

Untersuchung der Resonanzfluoreszenz eines einzelnen gespeicherten Ions

Frank Diedrich



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41554818_0103

**Untersuchung der Resonanzfluoreszenz
eines einzelnen gespeicherten Ions**

DISSERTATION

der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von

Frank Diedrich
aus Hildesheim

München, den 9.1.1987

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Walther
2. Gutachter: Prof. Dr. T.W. Hänsch
Priv.Do. Dr. G. Leuchs

Tag der mündlichen Prüfung:

27.2.1987

INHALTSVERZEICHNIS

Zusammenfassung	1
1. Einleitung	3
2. Intensitätskorrelation und Statistik in der Resonanzfluoreszenz	8
2.1. Die Intensitätskorrelation einer klassischen Lichtquelle	8
2.2. Die Intensitätskorrelation eines Zweiniveaumatoms: heuristische Betrachtung	9
2.3. Berechnung der Korrelationsfunktion mit Feldquantisierung	13
2.4. Sub-Poisson Statistik in der Resonanzfluoreszenz	17
3. Speicherung und Photonenrückstoßkühlung von Ionen	20
3.1. Speicherung in der Paul-Falle	21
3.2. Die Kühlung von gespeicherten Ionen	23
4. Experimentelle Anordnung zur Speicherung und Kühlung von Ionen	28
4.1. Beschreibung von Vakuumapparatur und Ionenfalle	28
4.1.1. Vakuumsystem	28
4.1.2. Ionenfalle	29
4.2. Beschreibung des Lasersystems	32
5. Spektroskopie an gespeicherten Ionen	39
5.1. Spektroskopie an Magnesium-Ionen-Wolken	39
5.2. Der quantitative Ionennachweis	41
5.3. Spektroskopie an einzelnen Ionen	46
6. Der Korrelator	53
7. Messung der Intensitätskorrelation	57
7.1. Abhängigkeit der Intensitätskorrelation von der Laserintensität	63
7.2. Berechnung der Temperatur aus den Korrelationsspektren	63
7.3. Nachweis der Sub-Poisson Statistik	67
8. Ausblick: hochauflösende Spektroskopie mit gespeicherten Ionen	71
Literaturverzeichnis	73

Zusammenfassung

Messungen an einzelnen im leeren Raum ruhenden Teilchen gehören traditionell in den Bereich der Gedankenexperimente. Im Zusammenwirken von Techniken zur Speicherung von Ionen in elektromagnetischen Feldern mit der Laserspektroskopie ist es in den vergangenen Jahren möglich geworden, dem Ideal störungsfrei gespeicherter Teilchen sehr nahe zu kommen.

In der Paul-Falle werden Ionen in einem oszillierenden Sattelpotential gespeichert, dessen Feldstärke quadratisch mit dem Abstand vom Zentrum zunimmt. Gemittelt über eine Zeit groß im Vergleich zur Oszillationsperiode bewegen sich die Ionen wie in einem parabolischen Potentialtopf. Durch den Strahlungsdruck von schmalbandigem Laserlicht, dessen Frequenz auf die langwellige Flanke der atomaren Resonanz abgestimmt ist, kann die kinetische Energie der im Potentialtopf schwingenden Ionen reduziert werden. Die niedrigsten Energien werden dabei mit einzelnen Ionen erreicht, da diese im Zentrum des Sattelpotentials an einem Ort verschwindenden Speicherfelds lokalisiert werden können. Ist die Dimension des Aufenthaltsgebiets klein im Vergleich zur Wellenlänge des Laserlichts, so wird, wie von R.H. Dicke vorausgesagt wurde, der lineare Dopplereffekt eliminiert. Die nächsthöhere Ordnung des Dopplereffekts, die relativistische Zeitdilatation, ist proportional zu v^2/c^2 und wird daher proportional zur kinetischen Energie des gekühlten Ions reduziert. Da die Speicherzeit in der Ionenfalle nur durch Restgasstöße begrenzt wird, können im Ultrahochvakuum einzelne Ionen für lange Zeit beobachtet werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Versuchsanordnung zur Speicherung, Kühlung und zum Nachweis einzelner Ionen aufgebaut. Die Experimente wurden mit dem $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ Übergang des Magnesium-Ions durchgeführt. In einer Paul-Falle konnten einzelne Ionen im Ultrahochvakuum bei einem Restgasdruck von 5×10^{-11} mb etwa 10 Minuten gespeichert werden. Die in diesem Experiment aufgebaute Ionenfalle ist wesentlich größer als bisher für die Untersuchung einzelner Ionen verwendete Anordnungen. Neben anderen Vorteilen gestattet sie die Installation eines sehr effizienten Abbildungssystems für die Resonanzfluoreszenz. Es war damit möglich, von einem einzelnen Ion ein Fluoreszenzsignal von 60 KHz nachzuweisen.

Für Kühlung und Nachweis des Ions durch die Resonanzfluoreszenz wurde ein Lasersystem aufgebaut, mit dem schmalbandige, durchstimbare Strahlung bei der Resonanzwellenlänge 280 nm erzeugt werden konnte. Hierzu wurde in einem KDP-Kristall die zweite Harmonische der im sichtbaren Spektralbereich emittierten Strahlung eines Dauerstrich-Farbstofflasers gebildet. Zur Erhöhung der Konversion ins Ultraviolette befand sich der Kristall in einem externen Resonator, in dem die Grundwelle zwanzigfach überhöht wurde. Mit dieser Anordnung konnte eine ultraviolette Strahlungsleistung von mehr als 0.5 mW erzeugt werden, ausreichend, um den schnellen Dipolübergang des Magnesium-Ions zu sättigen.

Zur Untersuchung der Intensitätskorrelation der Resonanzfluoreszenz wurde ein Korrelator mit einer Zeitauflösung von 0.79 ns aufgebaut. Dabei wurde

die Fluoreszenz auf zwei Photomultiplier aufgeteilt, die einen Zeit-Amplituden-Konverter ansteuerten. Dessen zum zeitlichen Abstand der Photonen proportionale Ausgangsspannung wurde in einem Vielkanalanalysator gespeichert. Eine Pulshöhenanalyse lieferte dann die Intensitätskorrelation als Funktion der Verzögerungszeit.

Im Zeitintervall von -15 bis +15ns, dessen Größenordnung durch die Lebensdauer des angeregten $^2P_{3/2}$ Zustands gegeben ist, konnte klassisch nicht erklärbares Verhalten der Korrelationsfunktion gemessen werden: nur die Quantenelektrodynamik vermag das dort beobachtete absolute Minimum der Intensitätskorrelationsfunktion (=Antibunching) zu erklären. Die theoretisch erwartete Abhängigkeit der Korrelationsfunktion von der Laserintensität konnte bestätigt werden. Da es möglich war, kontrollierbar mehrere Ionen gleichzeitig zu speichern, konnte auch die Abhängigkeit der Korrelationsfunktion von der Ionenzahl untersucht werden. Aus der Dämpfungszeit der Rabioszillationen wurde die Lebensdauer des $^{24}\text{Mg}^+-3^2P_{3/2}$ Zustands ermittelt.

Aus dem Verhalten der Intensitätskorrelationsfunktion nach dem Abklingen der Rabioszillationen lassen sich Erkenntnisse über den Bewegungszustand des gespeicherten Ions gewinnen. Dies ist wichtig für die hochauflösende Spektroskopie, wenn im Lamb-Dicke Bereich der lineare Dopplereffekt eliminiert ist und der Einfluß des quadratischen Dopplereffekts abgeschätzt werden soll. Die Korrelationsmessungen zeigten, daß die mit der Strahlungskühlung erzielte minimale kinetische Energie eines einzelnen Ions infolge Anregung durch das Speicherfeld größer war, als aufgrund der gängigen Modellvorstellung erwartet wird. Dieser durch Störfelder verursachte Effekt konnte durch eine Kompensationsspannung an den Polkappen reduziert werden. Eine quantitative Auswertung der Bewegung des Ions aus der Zeitabhängigkeit der Korrelationsfunktion ergab eine kinetische Energie entsprechend einer Temperatur von 60mK. Dieser Wert wurde der Berechnung eines Anregungsspektrums zugrundegelegt, das zur Überprüfung des hier erstmals durchgeführten Temperatur-Diagnostik-Verfahrens mit einem gemessenen Spektrum verglichen wurde und damit in guter Übereinstimmung stand.

Da bei diesem Experiment die Resonanzfluoreszenz eines kontinuierlich strahlenden einzelnen Ions gemessen wurde, konnte die enge Beziehung zwischen Antibunching und der ebenfalls klassisch nicht erklärbaren Sub-Poisson Statistik der Photoelektronen erstmals in demselben Experiment gezeigt werden. Dadurch wurde bewiesen, daß während der gesamten Speicherzeit des Ions eine klassisch nicht beschreibbare Lichtquelle im Labor realisiert war.

1. Einleitung

Die Quantennatur physikalischer Prozesse findet ihre grundlegende Ursache in der Unmöglichkeit, eine Messung vorzunehmen, ohne dabei das Meßobjekt zu verändern. Dieser Effekt ist jedoch nur bei mikroskopischen Objekten beobachtbar. Es ist daher von fundamentalem Interesse, mikroskopische Objekte zu präparieren und zu untersuchen. Besondere Bedeutung haben Experimente zur Untersuchung der Wechselwirkung von Atomen mit elektromagnetischer Strahlung, da hierfür mit der Quantenelektrodynamik eine eingehend getestete und verifizierte physikalische Theorie entwickelt wurde.

Es zeigt sich jedoch, daß nur wenige Experimente eine direkte Evidenz für die Quantennatur des elektromagnetischen Feldes im optischen Bereich liefern. Viele Prozesse können mit einer semiklassischen Theorie beschrieben werden, bei der nur das Atom quantisiert ist, während das Feld als klassische Größe behandelt wird. Die Quantisierung der atomaren Energiezustände ist lange bekannt, sie gab ja den Anstoß zur Entwicklung der Quantenmechanik und auch bei hohen Frequenzen wird die Quantisierung des Lichts zu Photonen in der Comptonstreuung direkt beobachtbar. Im optischen Bereich ist die spontane Emission zwar letztlich auch in den Nullpunktsfluktuationen des quantisierten elektromagnetischen Feldes begründet, aber ihre Existenz folgt bereits aus Einsteins Ratengleichungen des Schwarzen Strahlers¹ und zur quantitativen Berechnung der Zerfallskonstante genügt die semiklassische Theorie².

Nach dem Korrespondenzprinzip kommt die Quantennatur des elektromagnetischen Felds um so stärker zum Ausdruck, je kleiner die Besetzungszahl seiner Moden mit Photonen ist: die Intensitätsmessung einer nur mit einem einzigen Photon besetzten Feldmode verlangt die Absorption eben dieses Photons und verändert damit den Feldzustand entscheidend. Dieser Effekt kann in der Resonanzfluoreszenz monochromatischer Strahlung von einzelnen Atomen beobachtet werden. Die Theorie sagt dabei nichtklassische Effekte in der Photonenstatistik und in der Intensitätskorrelationsfunktion voraus.

Klassische Felder haben die Eigenschaft, daß unmittelbar nach Messung einer hohen Intensität (zum Beispiel als Folge einer Fluktuation) ebenfalls eine hohe Intensität gemessen wird. Dies bewirkt, daß die Intensitätskorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ klassischer Felder im allgemeinen ein Maximum bei $\tau = 0$ zeigt. Für thermische Lichtquellen ist $g^{(2)}(0)$ beispielsweise doppelt so hoch wie $g^{(2)}(\tau \rightarrow \infty)$. Die Emission der Photonen erfolgt zeitlich nicht gleichmäßig, sondern in Bündeln, so daß man von Bunching spricht.

Laserstrahlung weit oberhalb der Schwelle realisiert die Lichtquelle mit den kleinsten klassisch erlaubten Fluktuationen. Die Wahrscheinlichkeit, ein Photon zu messen, ist unabhängig von der Vorgeschichte immer gleich groß, so daß die Intensitätskorrelationsfunktion konstant ist. Dies hat eine Poisson-Statistik der in einem festen Zeitintervall gemessenen Photonenzahlen zur Folge.

Ein einzelnes angeregtes Atom verhält sich ganz anders: unmittelbar nach der

Messung eines Photons kann kein zweites nachgewiesen werden, weil alle Feldmoden unbesetzt sind und das Atom durch den Nachweis des ersten Photons in den Grundzustand projiziert wurde, von dem aus es nicht streuen kann. Dies führt zu einem Antibunching genannten Minimum der Korrelationsfunktion bei $\tau = 0$ und einer Photonen-zählstatistik mit einer im Vergleich zur Poissonverteilung kleineren Schwankungsbreite (Sub-Poisson Statistik).

Experimentell konnte das Modell der Wechselwirkung eines monochromatischen Strahlungsfeldes mit einem einzelnen Atom angenähert werden durch Laser-Resonanzfluoreszenz-Experimente an schwachen Atomstrahlen. Die Dichte des Strahls wurde so klein gehalten, daß die mittlere Anzahl $\langle N \rangle$ von Atomen im Beobachtungsgebiet von der Größenordnung Eins war, so daß die nachgewiesenen Photonen mit hoher Wahrscheinlichkeit vom selben Atom emittiert wurden. Die aktuelle Zahl der Atome im Beobachtungsvolumen unterliegt jedoch immer einer Poisson-Statistik. Eine Berücksichtigung dieser Schwankungen bei der Berechnung von $g^{(2)}(\tau)$ zeigte, daß dabei der nichtklassische Charakter des Antibunching verlorengeht³: unabhängig von $\langle N \rangle$ ist $g^{(2)}(0)$ immer größer als Eins, was nicht mehr im Widerspruch zu klassischen Feldern steht.

Nur durch eine spezielle Normierung ließ sich aus den Atomstrahlungsmessungen Evidenz für den nichtklassischen Charakter der Resonanzfluoreszenz ableiten⁴. Dies bedeutet, daß nur für Zeiten klein im Vergleich zur Korrelationszeit der Atomdichteschwankungen ein nichtklassisches Strahlungsfeld am Detektor existiert. Diese Korrelationszeit ist durch die Durchflußzeit der Atome durch das Beobachtungsgebiet gegeben.

Im ersten Experiment von Mandel et al.⁵ war das Beobachtungsgebiet so klein, daß die Durchflußzeit von der gleichen Größenordnung war wie die Zeitkonstante für die nichtklassischen Effekte. Ein Vergleich der gemessenen Korrelationsfunktion mit der Theorie ließ sich daher erst nach aufwendiger Einrechnung der experimentellen Randbedingungen durchführen⁶⁻⁷.

Eine wesentliche Verbesserung konnte in den Experimenten von Rateike et al.⁸⁻⁹ durch eine Vergrößerung des Beobachtungsgebiets erzielt werden, so daß die theoretischen Vorhersagen direkt mit den Messungen verglichen werden konnten. Dabei wurden die mit der Feldquantisierung erzielten Ergebnisse¹⁰⁻¹² bestätigt. Die Durchflußzeit war allerdings immer noch so kurz, daß ein Atom im Mittel weniger als ein Photon in den Detektor streut und Meßzeiten von mehreren Stunden zur Aufnahme eines auswertbaren Korrelationsspektrums nötig waren⁸.

Betrachtet man die Atomstrahlanordnung als eine während der Gesamtmeßdauer eingeschaltete Lichtquelle, so stehen ihre statistischen Eigenschaften nicht mehr im Widerspruch zu einer klassischen Beschreibung: Die nichtklassische Sub-Poisson Statistik wird durch die Atomstrahlfluktuationen überdeckt.

Die Sub-Poisson Statistik der Resonanzfluoreszenz ist dennoch im Atomstrahl-experiment beobachtbar, wenn nur während des Aufenthalts eines Atoms im Beobachtungsgebiet der Detektor geöffnet wird. Short et al.¹³ konnten diesen Nachweis

realisieren, indem sie erst nach dem Nachweis eines Photons in einem Startdetektor einen zweiten Detektor für ein kurzes Zeitfenster öffneten. Wegen der geringen Nachweiseffizienz des Detektionssystems war die mittlere Zahl der im Zeitfenster nachgewiesenen Photonen sehr klein, so daß über eine große Zahl von Ereignissen gemittelt werden mußte, um eine signifikante Abweichung von der Poisson-Statistik zu bekommen. Hierfür waren wiederum sehr lange Meßzeiten notwendig, da ja durch das Triggervorgang nur ein Bruchteil der Gesamtlaufzeit des Experiments für die Statistikmessung genutzt werden konnte.

Die mit der Atomzahlstatistik verbundenen Schwierigkeiten der Atomstrahl-experimente lassen sich in idealer Weise eliminieren, wenn man einzelne Atome isoliert und in einem monochromatischen Strahlungsfeld festhält. Hierbei muß die Strahlung selbstverständlich im Ruhesystem des Atoms monochromatisch sein, so daß sowohl eine schmalbandige Lichtquelle als auch eine Reduzierung der zum Dopplereffekt Anlaß gebenden thermischen Eigenbewegung des Atoms notwendig ist. Für das Atom gilt das Lichtfeld als monochromatisch, wenn die Linienbreite klein gegen die natürliche Linienbreite ist. Selbst schnelle Dipolübergänge erfordern sowohl im Einmodenbetrieb stabilisierte Laser als auch die Kühlung der atomaren Temperatur in den Sub-Kelvin Bereich.

Eine Anordnung zur störungsfreien Speicherung von Ionen im Vakuum wurde zuerst von Paul¹⁴ demonstriert: Es läßt sich zeigen, daß in einem Quadrupolpotential, dessen Polarität periodisch umgepolt wird, geladene Teilchen bei richtig gewählter Spannung und Frequenz eingeschlossen werden, so daß in einer solchen Ionenfalle ideale Bedingungen für die hochauflösende Spektroskopie gegeben sind. Da die Ionen während der langen Speicherzeit mit dem Strahlungsfeld wechselwirken können, tritt keine in der Energie-Zeit Unschärferelation begründete Linienverbreiterung auf. Des weiteren erlauben selbst sehr schwache Kühlmechanismen eine starke Reduzierung der Iontemperatur, wenn die Anregung der Ionenbewegung gering ist. Hauptmechanismus für eine solche Anregung ist in der Paul-Falle das einschließende Speicherfeld selbst: Gespeicherte Ionen führen im oszillierenden Quadrupolfeld Schwingungen aus, deren Amplitude quadratisch mit dem Abstand zum Zentrum wächst. Es ist aber möglich, ein einzelnes Ion im Zentrum des Quadrupolpotentials in Ruhe festzuhalten, da dort die Feldstärke verschwindet. Hierzu wird ein neutrales Atom im einschließenden Potential ionisiert und gespeichert. Die von Zeitpunkt und Ort der Entstehung des Ions abhängige kinetische Energie kann durch den Strahlungsdruck schmalbandiger Laserstrahlung reduziert werden. Indem die Frequenz des Laserlichts kleiner gewählt wird, als zur resonanten Anregung des Ions nötig ist, wird eine Absorption von Photonen aus der Laserstrahlung wahrscheinlicher, wenn sich das Ion auf den Laserstrahl zubewegt als im umgekehrten Fall, so daß es durch den Strahlungsdruck der Photonen gebremst wird. Die bei diesem Prozeß prinzipiell erreichbaren Temperaturen sind nur durch den Quantencharakter des Photonenrückstoßes bzw. durch die Nullpunktsenergie des gebundenen Ions limitiert¹⁵. Kühlung und Einschluß einzelner Ionen wurden in den vergangenen Jahren an Barium¹⁶⁻¹⁷, Magnesium¹⁸, sowie Quecksilber¹⁹-ionen demonstriert.

Eine prinzipielle Schwierigkeit erwächst bei der Spektroskopie von Ionen daraus, daß durch die starke Bindung des Leuchtelektrons an den Kern oft bereits der erste angeregte Zustand energetisch sehr hoch liegt, so daß er nur mit ultravioletttem Licht angeregt werden kann. Es gibt andererseits in weiten Regionen des ultravioletten Spektralbereichs keine durchstimmbaren schmalbandigen Laser, so daß zur hochauflösenden Spektroskopie an Ionen die zweite Harmonische von sichtbarem Farbstofflaserlicht in einem nichtlinearen Prozeß gebildet werden muß.

Eine Ausnahme bilden die schweren Erdalkalitionen, deren Emission vom angeregten P-Zustand im sichtbaren Spektralbereich liegt. Diese Ionen besitzen aber einen tieferliegenden metastabilen D-Zustand, in den das Ion nach wenigen Anregungszyklen hineingepumpt wird. Um eine für Strahlungskühlung und Fluoreszenznachweis ausreichende Absorptionsrate zu bekommen, muß mit einem zweiten Laser das metastabile D-Niveau über den P-Zustand entleert werden. Auf diese Weise konnten gespeicherte Bariumionen gekühlt und optisch nachgewiesen werden^{16,17}. Die Interpretation der Spektren wird jedoch durch die Ramankopplung des Grundzustands mit dem metastabilen D-Zustand erschwert.

Die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurden mit dem Magnesium-Ion durchgeführt, da es für die Untersuchung der Resonanzfluoreszenz ideale Eigenschaften besitzt:

1. Das einfach ionisierte Magnesium-Ion besitzt ein theoretisch leicht beschreibbares Einelektronenspektrum. Das mit 80 Prozent relativem Anteil im natürlichen Isotopengemisch vorhandene ^{24}Mg besitzt als Erdalkalium mit gerader Massenzahl keinen Kernspin, also auch keine Hyperfeinstruktur. Mit einem schmalbandigen Laser läßt sich der $^2S_{1/2}$ Grundzustand ausschließlich mit dem $^2P_{3/2}$ Zustand koppeln, so daß auf einfache Weise ein atomares Zweiniveausystem präpariert werden kann.
2. Die Lebensdauer des $^2P_{3/2}$ Zustands ist mit 3.7ns sehr kurz. Bei sättigender Anregung ist daher die Resonanzfluoreszenz selbst eines einzelnen Ions intensiv genug, um mit gutem Signal-Rauschabstand nachgewiesen zu werden.
3. Der $^2P_{3/2}$ Zustand kann durch einen Einphotonenübergang bei der Wellenlänge 280nm vom Grundzustand aus erreicht werden. Für diese Wellenlänge stehen nichtlineare Kristalle zur Frequenzverdopplung zur Verfügung. Die Grundwelle bei 560nm fällt in den Abstimmbereich effizienter Laserfarbstoffe.

Das Thema dieser Arbeit ist die Untersuchung der Resonanzfluoreszenz einzelner Ionen. Im ersten Kapitel wird die Theorie der Antibunching und Sub-Poisson Statistik zugrundeliegenden Physik skizziert; anschließend werden für das Experiment wichtige theoretische Überlegungen zur Ionenspeicherung und Kühlung dargestellt. Die experimentelle Aufgabe bestand zunächst einmal darin, eine Anordnung zur Speicherung, zum Nachweis und zur Kühlung einzelner Ionen in einer Ionenfalle bereitzustellen. Deshalb wird im experimentellen Teil dieser Arbeit nach einer Beschreibung der Apparatur zunächst der Weg erläutert, der schließlich zum

einzelnen, gekühlten Ion führte. Es folgt eine Beschreibung des Korrelators und eine Darstellung der Korrelationsmessungen an einzelnen Ionen. Im Ausblick werden weiterführende Experimente mit einzelnen gespeicherten Ionen diskutiert.

2. Intensitätskorrelation und Statistik in der Resonanzfluoreszenz

2.1. DIE INTENSITÄTSKORRELATION EINER KLASSISCHEN LICHTQUELLE

Bevor die Resonanzfluoreszenz einzelner Atome eingehender diskutiert wird, soll anhand einer einfachen Überlegung gezeigt werden, daß im Antibunching ein wellenoptisch nicht erklärbares Phänomen vorliegt. Hierzu wird ein Korrelations-experiment betrachtet, welches in dieser Form zuerst von Hanbury-Brown und Twiss²⁰ durchgeführt wurde (Bild 1).

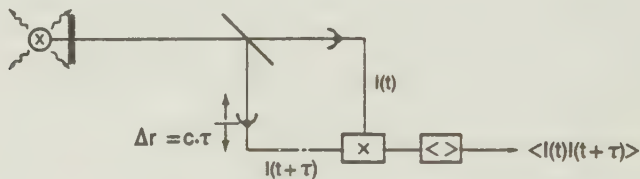


Bild 1 : Experimentelle Anordnung des Hanbury-Brown und Twiss Experiments

Gegeben sei eine Lichtquelle der Intensität $I(t) = \langle I \rangle + \Delta I(t)$, die sich additiv aus einem konstanten Mittelwert $\langle I \rangle$ und einer Schwankung $\Delta I(t)$ zusammensetzt. Die (nicht normierte) Intensitätskorrelationsfunktion $G^{(2)}(\tau)$ erhält man durch Multiplikation der mit einer zeitlichen Verzögerung τ gemessenen Intensitäten und anschließende Mittelung. Es sei angenommen, daß die Lichtquelle durch einen stationären Prozeß beschrieben wird, daß also ihre Statistik nicht von der Zeit t abhängt. Nach dem Ergodenprinzip kann dann die Mittelwertbildung durch zeitliches Mitteln erfolgen:

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\tau) &= \langle I(t)I(t+\tau) \rangle \\ &= \langle (\langle I \rangle + \Delta I(t)) (\langle I \rangle + \Delta I(t+\tau)) \rangle \\ &= \langle I \rangle^2 + \langle \Delta I(t)\Delta I(t+\tau) \rangle \end{aligned} \quad (2.1)$$

Eckige Klammern bezeichnen hierbei die zeitliche Mittelwertbildung. Die Produkte $\langle I \rangle \langle \Delta I(t) \rangle$ verschwinden, da der Mittelwert der Schwankung $\Delta I(t)$ verschwindet. Für gleichzeitig gemessene Intensitäten und für sehr große Verzögerungszeiten läßt sich dieser Ausdruck vereinfachen. Speziell für $\tau = 0$ und für $\tau \rightarrow \infty$ gilt

$$G^{(2)}(0) = \langle I \rangle^2 + \langle \Delta I(t)^2 \rangle \quad (2.2)$$

$$G^{(2)}(\tau \rightarrow \infty) = \langle I \rangle^2 + \langle \Delta I(t)\Delta I(t \rightarrow \infty) \rangle = \langle I \rangle^2 \quad (2.3)$$

Der Mittelwert über das Produkt der zu verschiedenen Zeiten gemessenen Schwankungen in Gl. (2.3) verschwindet, da zeitlich weit auseinander liegende Schwan-

kungen nicht korreliert sind. Als wichtige Konsequenz zeigt sich, daß die Korrelationsfunktion an der Stelle $\tau = 0$ immer größer oder gleich dem asymptotischen Grenzwert für $\tau \rightarrow \infty$ ist: $G^{(2)}(0) \geq G^{(2)}(\tau \rightarrow \infty)$. Ein absolutes Minimum der Korrelationsfunktion bei $\tau = 0$ und damit Antibunching ist unmöglich.

2.2. DIE INTENSITÄTSKORRELATION EINES ZWEINIVEAUATOMS: HEURISTISCHE BETRACHTUNG

Traditionell wird das Atom im Strahlungsfeld mit störungstheoretischen Methoden berechnet²¹. Dabei wird der Einfluß des Feldes in einem Störungsterm zum atomaren Hamiltonoperator berücksichtigt. Dieser Ansatz setzt voraus, daß das ungestörte Atom durch die Strahlungswechselwirkung nur wenig verändert wird. Insbesondere darf die Beimischung angeregter Zustände zum Grundzustand durch die Kopplung mit dem Feld nur gering sein. Bei starker Anregung liefert die Behandlung der Strahlungswechselwirkung von Atomen durch die Störungsrechnung keine brauchbaren Ergebnisse mehr, weil die Besetzung des angeregten Zustands nicht vernachlässigt werden kann. Es ist aber möglich, den atomaren Zustand und das Feld in einem Produktraum zusammenzufassen und in diesem 'dressed atom'-Bild auch bei starken Feldern korrekte Vorhersagen zu machen¹². Das 'dressed atom'-Modell gestattet es überdies, die wichtigsten Charakteristika der Intensitätskorrelationsfunktion auf sehr anschauliche Weise zu verstehen. Der Hamiltonoperator für das 'dressed atom' läßt sich unter folgenden Annahmen herleiten:

1. Das Strahlungsfeld des Lasers ist monochromatisch. Es wird beschrieben durch den Hamiltonoperator (Operatoren werden im folgenden durch **Fettdruck** gekennzeichnet)

$$\mathbf{H}_L = \hbar\omega_L \mathbf{a}_L^\dagger \mathbf{a}_L \quad (2.4)$$

Dabei bezeichnen $\mathbf{a}_L^\dagger$ und $\mathbf{a}_L$ die üblichen Auf- bzw. Absteigeoperatoren für die vom Laser angeregte Feldmode und ω_L die Laserfrequenz.

Diese Annahme ist gerechtfertigt, wenn die Laserlinienbreite kleiner ist als alle anderen im Experiment relevanten Linienbreiten und inversen Relaxationszeiten. Mit einer Laserlinienbreite von $2\pi \times 1\text{MHz}$ und einer natürlichen Linienbreite Γ des $\text{Mg}^+ 3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ Übergangs von $2\pi \times 43\text{MHz}$ war dies im Experiment gegeben.

2. Das Atom wird durch ein Zweiniveausystem beschrieben mit dem atomaren Hamiltonoperator:

$$\mathbf{H}_A = \frac{1}{2} \hbar\omega_0 (|a\rangle\langle a| - |g\rangle\langle g|) =: \hbar\omega_0 \mathbf{S}_z \quad (2.5)$$

Der Grundzustand wird mit $|g\rangle$ und der angeregte Zustand mit einer Anregungsenergie $\hbar\omega_0$ wird mit $|a\rangle$ bezeichnet.

Durch die Verwendung linear polarisierten Lichts in naher Resonanz zum $3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ Übergang werden zwei Übergänge induziert, nämlich $m_j = -1/2 \rightarrow m_j = -1/2$ und $m_j = +1/2 \rightarrow m_j = +1/2$. Diese sind jedoch völlig äquivalent, da Anregung und Nachweis symmetrisch bezüglich eines Umklappens der z-Achse sind.

3. Laserfeld und Atom koppeln in der Dipolwechselwirkung. In der Resonanznäherung lautet der Wechselwirkungsoperator:

$$\mathbf{V} = \lambda(|a\rangle\langle g| \mathbf{a}_L + |g\rangle\langle a| \mathbf{a}_L^\dagger) =: \lambda(\mathbf{S}^+ \mathbf{a}_L + \mathbf{S}^- \mathbf{a}_L^\dagger) \quad (2.6)$$

mit einer Kopplungskonstanten λ .

Die Dipolnäherung ist bei der Anregung aus dem Grundzustand mit sichtbarer oder ultravioletter Strahlung immer anwendbar, da die Ausdehnung der Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Elektrons klein ist gegen die Wellenlänge. Die Resonanznäherung vernachlässigt die schnell oszillierenden Terme $|a\rangle\langle g| \mathbf{a}_L^\dagger$ und $|g\rangle\langle a| \mathbf{a}_L$. Damit wird die Bloch-Siegert Verschiebung (von der Größenordnung $\frac{\Gamma}{\omega_0^2}$ bei einsetzender Sättigung) vernachlässigt.

Insgesamt besteht der Hamiltonoperator aus einem atomaren Term, einem Feldterm und einem Wechselwirkungsterm:

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_A + \mathbf{H}_F + \mathbf{V} = \hbar\omega_0 \mathbf{S}_z + \hbar\omega_L \mathbf{a}_L^\dagger \mathbf{a}_L + \lambda(\mathbf{S}^+ \mathbf{a}_L + \mathbf{S}^- \mathbf{a}_L^\dagger) \quad (2.7)$$

Bei Vernachlässigung der Wechselwirkung ($\lambda = 0$) führt die Schrödingergleichung zu einer unendlichen Leiter von stationären Zuständen $|a\rangle|n\rangle$ bzw. $|g\rangle|n\rangle$ mit $n = 0, 1, 2, \dots, \infty$. Bei ihnen ist die Lasermode mit n Photonen angeregt und das Atom befindet sich im angeregten bzw. Grundzustand. Wegen der Entkopplung des atomaren und des Feldanteils im Hamiltonoperator lassen sich die Energien leicht angeben:

$$\begin{aligned} (\mathbf{H}_A + \mathbf{H}_F) |a\rangle|n\rangle &= \left(\frac{1}{2}\hbar\omega_0 + n\hbar\omega_L\right) |a\rangle|n\rangle \\ (\mathbf{H}_A + \mathbf{H}_F) |g\rangle|n+1\rangle &= \left(-\frac{1}{2}\hbar\omega_0 + (n+1)\hbar\omega_L\right) |g\rangle|n+1\rangle \end{aligned} \quad (2.8)$$

Man sieht sofort, daß diese Zustände bei resonantem Laserfeld wegen $\omega_0 = \omega_L$ energetisch entartet sind. Die Wechselwirkung $\mathbf{V}$ hebt diese Entartung auf und führt zu stationären Superpositionszuständen. Da der Wechselwirkungsoperator nur die vorher entarteten Zustände koppelt, kann mit den Zuständen aus Gl. (2.8) die Schrödingergleichung für den gestörten Hamiltonoperator aus Gl. (2.7) exakt gelöst werden. Bei resonanter Anregung erhält man Eigenzustände $|+, n\rangle$ und $|-, n\rangle$, die aus einer gleichstarken Superposition von Grundzustand und angeregtem Zustand gebildet werden:

$$\begin{aligned} |+, n\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|a\rangle|n\rangle + |g\rangle|n+1\rangle) \\ |-, n\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|a\rangle|n\rangle - |g\rangle|n+1\rangle) \end{aligned} \quad (2.9)$$

Dies kann leicht durch Einsetzen in die Schrödingergleichung $\mathbf{H} | \pm, n \rangle = E_{\pm} | \pm, n \rangle$ überprüft werden. Damit erhält man auch die Energieaufspaltung $\Delta E = E_+ - E_- = \langle +, n | \mathbf{V} | +, n \rangle - \langle -, n | \mathbf{V} | -, n \rangle = 2\lambda\sqrt{n+1}$. Bei der üblicherweise gegebenen starken Laseranregung ist $n \gg 1$ und die Energieaufspaltung wächst proportional zu $\sqrt{n}$, also proportional zur Feldstärke des Lasers. Der Unterschied in der zeitlichen Entwicklung der Energieeigenzustände wird durch

den Phasenfaktor $e^{i\frac{\Delta E}{\hbar}t}$ bestimmt. Er hat zur Folge, daß Grundzustand und angeregter Zustand des Atoms nicht mehr stationär sind, da sie durch Überlagerung von Eigenzuständen zu verschiedenen Energien gebildet werden.

Bei der Messung der Intensitätskorrelationsfunktion wird die Wahrscheinlichkeit bestimmt, mit der einem nachgewiesenen Photon ein zweites mit einer Verzögerung τ folgt. Nach der Emission des ersten Photons zur Zeit $\tau = 0$ befindet sich das Atom im Grundzustand (die Lasermode sei mit n Photonen besetzt):

$$|g\rangle |n+1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+,n\rangle - |-,n\rangle) \quad (2.10)$$

Die Wahrscheinlichkeit, zu einer späteren Zeit $\tau > 0$ ein zweites Photon zu emittieren, ist proportional zur Aufenthaltswahrscheinlichkeit $P_a(\tau)$ im oberen Zustand. Diese ist durch das Betragsquadrat des Überlapps der Wellenfunktion aus Gl. (2.10) mit dem angeregten Zustand $|a\rangle |n\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+,n\rangle + |-,n\rangle)$ gegeben. Die zeitliche Entwicklung des nichtstationären Grundzustands wird dabei explizit durch den Phasenfaktor $e^{i\frac{\Delta E}{\hbar}\tau}$ berücksichtigt:

$$\begin{aligned} P_a(\tau) &= \frac{1}{4} | \langle +,n | \langle +,n \rangle (|+,n\rangle - e^{i\frac{\Delta E}{\hbar}\tau} |-,n\rangle) |^2 \\ &= \frac{1}{2} \left(1 - \cos \frac{\Delta E}{\hbar} \tau \right) \end{aligned} \quad (2.11)$$

Nach der Projektion des Atoms in eine kohärente Superposition von Eigenzuständen unterschiedlicher Energie zur Zeit $\tau = 0$ beobachtet man wegen der Interferenz der Wahrscheinlichkeitsamplituden bei der zeitaufgelösten Messung von $P_a(\tau)$ ein Schwebungssignal, dessen Frequenz in Analogie zur Quantenbeatmethode die Information über die Energieaufspaltung trägt. Im Gegensatz zur Quantenbeatmethode, bei der eine vorgegebene Energieaufspaltung durch die Laseranregung abgetastet wird, entsteht im hier betrachteten 'dressed atom'-Bild die Aufspaltung erst durch die Wechselwirkung mit der Laserstrahlung. Die Frequenz der Schwebung ist die durch die Energieaufspaltung $\frac{\Delta E}{\hbar}$ bestimmte Rabi-Frequenz Ω_{R0} . Bei einer Verstimmung $\omega_0 - \omega_L = \Delta$ erhält man durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators Gl. (2.7) mit den Zuständen aus Gl. (2.8) die Energieaufspaltung ΔE und daraus die nichtresonante Rabi-Frequenz $\Omega_R = \frac{\Delta E}{\hbar} = \sqrt{\Omega_{R0}^2 + \Delta^2}$.

Ist die Verzögerungszeit zwischen erstem und zweitem nachgewiesenen Photon groß im Vergleich zur Lebensdauer des angeregten Zustands, so ist es sehr wahrscheinlich, daß inzwischen eine nicht beobachtete spontane Emission stattgefunden hat. Diese zerstört die Phasenbeziehung von Gl. (2.11), da durch das unbeobachtete Photon die Präparation des Superpositionszustands zu einem unbekannten Zeitpunkt stattfindet. Die Oszillation wird daher mit einer durch die Lebensdauer Γ^{-1} des angeregten Zustands gegebenen Zeitkonstante gedämpft:

$$P_a(\tau) \sim 1 - e^{-\Gamma\tau} \cos \Omega_R \tau \quad (2.12)$$

Zur Zeit $\tau = 0$ ist die Wahrscheinlichkeit, ein zweites Photon nachzuweisen, gleich Null. Mit einer durch die Rabiperiode gegebenen Zeitkonstante Ω_R^{-1} steigt sie auf

den Maximalwert an und zeigt oszillatorisches Verhalten, das nach einigen Lebensdauern Γ^{-1} abklingt. Die Intensitätskorrelationsfunktion $G^{(2)}(\tau)$ ist proportional zu P_a und zeigt daher dieselbe Zeitabhängigkeit. Im Widerspruch zu klassischen Feldern besitzt sie mit $G^{(2)}(0) = 0$ ein absolutes Minimum bei $\tau = 0$. Der Widerspruch erwächst aus der in Gln. (2.2–2.3) gemachten Annahme, daß die Mittelung über das Schwankungsquadrat $\langle \Delta I(t)^2 \rangle$ eine nichtnegative Größe ist. In diese Annahme geht implizit die Voraussetzung ein, daß die Schwankung meßbar ist, ohne sie dabei zu verändern. Besteht dagegen im extrem nichtklassischen Fall die Schwankung nur aus einem einzelnen Photon, so wird durch den Nachweis die Schwankung beseitigt, da das Photon absorbiert wurde. Es ist klar, daß hierdurch eine Antikorrelation zwischen unmittelbar aufeinanderfolgenden Messungen bewirkt wird.

Eine der klassischen Mittelwertbildung etwas näherstehende Auflösung des Widerspruchs besteht in der Entwicklung des Feldes in eine Superposition von kohärenten Zuständen²². Diese haben weitgehend ähnliche Eigenschaften wie klassische Wellen. Die kohärenten Zustände sind Eigenzustände des Absteigeoperators a mit dem komplexen Eigenwert α , dessen Betrag die Amplitudeninformation des Feldes trägt. Sie bilden ein vollständiges System, so daß jeder Feldzustand nach ihnen entwickelt werden kann, sind aber nicht orthogonal zueinander. Dies ist auch nicht zu erwarten, da der Absteigeoperator a nicht hermitesch ist und somit auch keiner Observablen entspricht. Der Mittelwertbildung im Klassischen entspricht nun eine gewichtete Integration über alle komplexen Eigenwerte α . Für die Intensitätskorrelationsfunktion erhält man²³

$$G^{(2)}(0) = \langle I \rangle^2 + \int_{\alpha \in C} (\Delta I(\alpha))^2 P(\alpha) d^2\alpha \quad (2.13)$$

Dieser Ausdruck ist völlig analog zur klassischen Rechnung, mit dem Unterschied, daß dort P eine Wahrscheinlichkeitsverteilung bezeichnet, so daß das Integral keine negativen Werte annehmen kann. Bei der quantisierten Betrachtung erhält man $P(\alpha)$ aus der Diagonalentwicklung der Dichtematrix ρ des Strahlungsfeldes nach kohärenten Zuständen²²:

$$\rho = \int_{\alpha \in C} P(\alpha) |\alpha\rangle \langle \alpha| d^2\alpha \quad (2.14)$$

Wegen der Nicht-Orthogonalität der kohärenten Zustände kann die Funktion $P(\alpha)$ nicht als Wahrscheinlichkeitsverteilung interpretiert werden. Sie kann für bestimmte Felder negativ oder hochgradig singulär werden. Insbesondere für Felder, deren Photonenzahl beschränkt ist, treten starke Singularitäten auf²². Es ist also auch von diesem Standpunkt aus ein Abweichen der Resonanzfluoreszenz vom klassischen Verhalten zu erwarten.

2.3. BERECHNUNG DER KORRELATIONSFUNKTION MIT FELDQUANTISIERUNG

Die Intensitätskorrelationsfunktion wird mit einer Photonenkoinzidenztechnik gemessen. Sie ist proportional zur Wahrscheinlichkeit, ein Photon zur Zeit t und ein zweites zur Zeit $t + \tau$ zu absorbieren. Die Wahrscheinlichkeitsamplitude für diesen Prozeß ist durch das Matricelement $\langle E_k | a(t + \tau)a(t) | A \rangle$ für die Zweiphotonenabsorption aus einem Ausgangszustand $| A \rangle$ in einen Endzustand $| E \rangle$ gegeben. Die Wahrscheinlichkeit für diese Zweiphotonenkoinzidenz ergibt sich daraus durch Bilden des Betragsquadrats und Summation über alle Endzustände²⁴

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\tau) &= \sum_k |\langle E_k | a(t + \tau)a(t) | A \rangle|^2 \\ &= \sum_k \langle A | a^+(t)a^+(t + \tau) | E_k \rangle \langle E_k | a(t + \tau)a(t) | A \rangle \\ &= \langle A | a^+(t)a^+(t + \tau)a(t + \tau)a(t) | A \rangle \end{aligned} \quad (2.15)$$

Dabei wurde die Vollständigkeitsrelation $\sum_k | E_k \rangle \langle E_k | = 1$ ausgenutzt und ein stationärer Prozeß vorausgesetzt, so daß die Intensitätskorrelationsfunktion nicht von der Zeit abhängt. Die Resonanzfluoreszenz wird vom atomaren Dipol abgestrahlt, so daß die zeitliche Entwicklung der Feldoperatoren $a(t)$, $a^+(t)$ durch die Dynamik des atomaren Dipolmoments bestimmt wird²⁵:

$$a(r, t) \sim S^-(t - \frac{\tau}{c}) \quad \text{und} \quad a^+(r, t) \sim S^+(t - \frac{\tau}{c}) \quad (2.16)$$

Dabei bezeichnen $S^- = | g \rangle \langle a |$ und $S^+ = | a \rangle \langle g |$ den atomaren Auf- bzw. Absteigeoperator. Sie sind proportional zur positiv bzw. negativ rotierenden Komponente des Dipolmoments. Durch Einsetzen der Beziehung Gl. (2.16) in Gl. (2.15) kann man die Intensitätskorrelationsfunktion durch atomare Operatoren ausdrücken:

$$G^{(2)}(\tau) \sim \langle S^+(t)S^+(t + \tau)S^-(t + \tau)S^-(t) \rangle \quad (2.17)$$

($\langle O \rangle$ bezeichnet den Erwartungswert des Operators O , der im hier verwendeten Heisenberg-Bild die Zeitabhängigkeit enthält.) Wegen $S^-S^- = S^+S^+ = 0$ folgt daraus sofort $G^{(2)}(0) = 0$. Das Antibunching ist also eine unmittelbare Konsequenz der Nilpotenz-Eigenschaft der atomaren Auf- bzw. Absteigeoperatoren!

Um die Zeitabhängigkeit der Korrelationsfunktion für $\tau > 0$ zu berechnen, wird das Operatorprodukt aus Gl. (2.17) unter Verwendung von $S^+S^- = \frac{1}{2} + S_z$ umgeformt:

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\tau) &\sim \langle S^+(t)(\frac{1}{2} + S_z(t + \tau))S^-(t) \rangle \\ &= \frac{1}{2} \langle S^+(t)S^-(t) \rangle + \langle S^+(t)S_z(t + \tau)S^-(t) \rangle \\ &= \frac{1}{2} P_a(t) + \langle S^+(t)S_z(t + \tau)S^-(t) \rangle \end{aligned} \quad (2.18)$$

$P_a(t)$ ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Atoms im oberen Zustand. Die zeitliche Entwicklung des Operatorprodukts im zweiten Term wird durch die Hei-

senberggleichung mit dem dressed-atom-Hamiltonoperator aus Gl. (2.7) beschrieben. Es zeigt sich¹², daß sie identisch zur Bewegung von S_z ist:

$$\langle S^+(t)S_z(t+\tau)S^-(t) \rangle = P_a(t) \langle S_z \rangle(t+\tau) \quad (2.19)$$

Eingesetzt in Gl. (2.18) ergibt sich ein sehr anschauliches Ergebnis:

$$G^{(2)}(\tau) \sim \frac{1}{2} + \langle S_z \rangle(t+\tau) \quad (2.20)$$

Die Korrelationsfunktion ist, wie in der heuristischen Betrachtung ad hoc angenommen wurde, proportional zur Wahrscheinlichkeit, das Atom zur Zeit $t+\tau$ im angeregten Zustand zu finden mit der Anfangsbedingung, daß es zur Zeit $\tau=0$ im Grundzustand ist. Die Projektion des Atoms in den Grundzustand beim Nachweis des ersten Photons ist der grundlegende nichtklassische Effekt, der zum Antibunching führt. Durch die quantenelektrodynamische Rechnung mit Feldoperatoren erhält man in Gl. (2.20) ein Ergebnis, das diese Zustandsreduktion als Anfangsbedingung enthält. Die Berechnung der Zeitabhängigkeit von $\langle S_z \rangle(t)$ ergibt sich wegen der formalen Äquivalenz des Zweiniveaumatoms zur Bewegung eines Spins im Magnetfeld²⁶ mit rein klassischen Methoden durch Lösen der optischen Blochgleichungen¹²:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle S_x \rangle &= -\Gamma \langle S_x \rangle + \frac{1}{2} + i\Omega_R \frac{\langle S^- \rangle - \langle S^+ \rangle}{2} \\ \frac{d}{dt} \langle S_{\pm} \rangle &= \pm i(\omega_0 - \omega_L) \langle S_{\pm} \rangle - \frac{\Gamma}{2} \langle S_{\pm} \rangle \mp i\Omega_R \langle S_{\mp} \rangle \end{aligned} \quad (2.21)$$

Die longitudinale bzw. transversale Relaxationskonstante Γ bzw. $\frac{\Gamma}{2}$ ergibt sich aus der Kopplung des Atoms an die nichtbesetzten Moden des Strahlungsfeldes. Für einige Spezialfälle kann die Lösung von Gl. (2.21) explizit angegeben werden²⁷. Eine Übertragung der Ergebnisse auf das Zweiniveaumatom mit einer Diskussion findet sich im Buch von Allen und Eberly²⁸. Die nach Gl. (2.20) daraus resultierende Zeitabhängigkeit der Intensitätskorrelationsfunktion wird für die analytisch lösbaren Spezialfälle im folgenden zusammengefaßt.

2.3.1. RESONANTE ANREGUNG: $\omega_0 - \omega_L = 0$

Bei resonanter Lasereinstrahlung ist die Intensitätskorrelationsfunktion gegeben durch:

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\tau) &\sim 1 - e^{-\frac{3}{4}\Gamma\tau} \left(\cos \Omega\tau + \frac{3\Gamma}{4\Omega} \sin \Omega\tau \right) \\ \Omega &= \sqrt{\Omega_{R0}^2 - \left(\frac{\Gamma}{4}\right)^2} \end{aligned} \quad (2.22)$$

Diese Lösung wurde als Resultat einer quantenelektrodynamischen Rechnung zuerst von Carmichael et al.²⁹ veröffentlicht. Bei stark sättigender Anregung ($\Omega \gg \Gamma$) zeigt dieser Ausdruck die gleiche Zeitabhängigkeit, wie sie in der heuristischen Betrachtung hergeleitet wurde:

$$G^{(2)}(\tau) \sim 1 - e^{-\frac{3}{4}\Gamma\tau} \cos \Omega_{R0}\tau \quad (2.23)$$

Die hier auftretende Abklingzeit unterscheidet sich von der erwarteten um einen Faktor $\frac{3}{4}$, da die transversale und longitudinale Relaxationskonstante in Gl. (2.21) unterschiedlich sind. Bei resonanter Anregung gehen beide gleich stark in die Dämpfung ein¹², so daß man für die gemittelte Relaxationskonstante $\frac{1}{2}(\Gamma + \frac{\Gamma}{2}) = \frac{3\Gamma}{4}$ erhält. Aufgrund dieser Differenz tritt auch der Zusatzterm $(\frac{\Gamma}{4})^2$ im Ausdruck für Ω in Gl. (2.22) auf.

2.3.2. NICHTRESONANTE, STARKE ANREGUNG: $\omega_0 - \omega_L = \Delta$, $\Omega_{R0} \gg \Gamma$

Durch die Verstimmung gehen longitudinale und transversale Relaxationszeit nicht mehr gleich stark in die Dämpfung ein. Man erhält ein Abklingen der Modulation mit

$$F(\tau) = e^{\left[-\frac{\Gamma}{4}\left(2 + \frac{\Omega_{R0}^2}{\Delta^2 + \Omega_{R0}^2}\right)\tau\right]} \quad (2.24)$$

Im Grenzfall wird bei großer Verstimmung ($\Delta \gg \Omega_{R0}$) die Dämpfung allein durch die transversale Relaxationszeit $(\frac{\Gamma}{2})^{-1}$ bestimmt. Die Modulationsfrequenz wird durch die Verstimmung vergrößert:

$$\Omega = \sqrt{\Omega_{R0}^2 + \Delta^2} = \Omega_R \quad (2.25)$$

in Übereinstimmung mit dem heuristischen Resultat.

2.3.3. NICHTRESONANTE, BELIEBIG STARKE ANREGUNG, GLEICHE RELAXATIONSZEITEN: $\omega_0 - \omega_L = \Delta$, RELAXATIONSZEIT = Γ

Dieser Fall ist mit einem atomaren Zweiniveausystem zwar nicht realisierbar, aber er erhellt die generelle Abhängigkeit von Modulationsfrequenz und Dämpfung von der Verstimmung. Man erhält eine Modulationsfrequenz $\Omega = \sqrt{\Omega_{R0}^2 + \Delta^2} = \Omega_R$ und eine Dämpfungskonstante Γ in völliger Übereinstimmung mit dem heuristischen Ergebnis:

$$G^{(2)}(\tau) \sim 1 - e^{-\Gamma\tau} \cos \Omega_R \tau \quad (2.26)$$

Typische experimentelle Parameter sind mit $\Delta \approx \Gamma \lesssim \Omega_{R0}$ gegeben, auf die keiner der oben genannten Spezialfälle anwendbar ist. Die im Experiment meßbare Modulationsfrequenz Ω und die Dämpfungskonstante können aus den gezeigten Abhängigkeiten dennoch in guter Näherung extrapoliert werden. Für die Relaxation der Rabi-Oszillationen erwartet man nach Gl. (2.24) eine Abklingzeit zwischen $\frac{5}{8}\Gamma$ (bei gerade einsetzender Sättigung mit $\Omega_{R0} = \Gamma$) und $\frac{3}{4}\Gamma$ (für starke Sättigung mit $\Omega_{R0} \gg \Gamma$).

Für die Modulationsfrequenz erwartet man eine Abhängigkeit gemäß $\Omega = \sqrt{\Omega_{R0}^2 + \Delta^2} - \epsilon$. Dabei ist ϵ eine Korrektur für die unterschiedliche transversale bzw. longitudinale Relaxationszeit. Sie ist nach Gl. (2.22) von der Größenordnung $(\frac{\Gamma}{4})^2$ und damit vernachlässigbar gegen $\Omega_{R0}^2 + \Delta^2 \approx 2\Gamma^2$.

Üblicherweise wird die Korrelationsfunktion auf das Quadrat der mittleren Intensität $\langle I \rangle^2$ normiert und dann mit $g^{(2)}(\tau)$ bezeichnet:

$$g^{(2)}(\tau) = G^{(2)}(\tau) / \langle I \rangle^2 \quad (2.27)$$

Nach sehr großen Verzögerungszeiten τ sind die Rabi-Oszillationen abgeklungen und auch klassische Intensitätsschwankungen haben nach Gl. (2.3) keinen Einfluß mehr auf die Korrelationsfunktion, die dann durch $\langle I \rangle^2$ gegeben ist. Die Normierung hat also auf den asymptotischen Wert $G^{(2)}(\tau \rightarrow \infty)$ zu erfolgen. Die oben angegebenen Lösungen für $G^{(2)}(\tau)$ beinhalten diese Normierung bereits und können also direkt der normierten Funktion $g^{(2)}(\tau)$ gleichgesetzt werden.

Gerade die Normierung ist bei den Atomstrahlexperimenten problematisch (vgl. Kap.1.), da dort die Zahl der beobachteten Atome nicht konstant ist, sondern einer Poisson-Statistik unterliegt. Jakeman et al.³ zeigten, daß aufgrund dieser Schwankungen die normierte Intensitätskorrelationsfunktion modifiziert wird zu

$$g_{\langle N \rangle}^{(2)}(\tau) = 1 + \frac{g^{(2)}(\tau)}{\langle N \rangle} \quad \tau \ll \tau_c \quad (2.28)$$

τ_c Korrelationszeit der Schwankung von N

so daß völlig unabhängig von der mittleren Zahl $\langle N \rangle$ von beobachteten Atomen kein Antibunching mehr auftritt. Befindet sich dagegen eine konstante Anzahl von N Atomen im Beobachtungsbereich, so wird das Antibunching zwar schwächer, geht aber nicht vollständig verloren⁴:

$$g_N^{(2)}(\tau) = 1 + (g^{(2)}(\tau) - 1) \frac{1}{N} \quad (2.29)$$

Hierdurch wird nahegelegt, die Korrelationsfunktion mit einem Intensitätsquadrat $\overline{I}_N^2$ zu normieren, das über eine Zeit klein im Vergleich zu τ_c gemittelt wurde. Auf diese Weise sollte das Antibunching auch mit der Atomstrahlanordnung beobachtbar bleiben. In diesem Fall ist die nichtklassische Strahlungsquelle eines einzelnen Atoms jedoch nur für τ_c , das durch die Durchflußzeit durch das Beobachtungsvolumen gegeben ist, eingeschaltet. Während dieser Zeit ist die Zahl der detektierten Photonen klein gegen Eins, so daß die mittlere Intensität $\overline{I}_N^2$ nicht direkt aus dem Fluoreszenzsignal bestimmt werden kann. Erst nach Mitteilung über viele unabhängige Atome kann aus dem Verlauf von $G_N^{(2)}(\tau)$ die mittlere Intensität $\overline{I}_N^2$ bestimmt werden: Für $\Gamma^{-1} \ll \tau \ll \tau_c$ sind die Rabi-Oszillationen bereits abgeklungen während sich die Zahl der Atome im Beobachtungsgebiet noch nicht merklich verändert hat. Durch Normierung auf den Wert der Korrelationsfunktion in diesem Bereich kann somit das in Gl. (2.29) beschriebene Verhalten gemessen werden. Demgegenüber gelangt bei der kontinuierlichen Beobachtung eines einzelnen Atoms während der gesamten Meßdauer nichtklassisches Licht in den Detektor, so daß das Antibunching auch bei Normierung auf die über die Gesamtmeßzeit gemittelte Intensität erhalten bleibt.

Diese Unterscheidung ist wichtig, da ein Zusammenhang zwischen der Intensitätskorrelationsfunktion und der Zählstatistik der Fluoreszenzphotonen besteht,

der zum ersten Mal im hier beschriebenen Ionenfallenexperiment direkt verifiziert werden konnte.

2.4. SUB-POISSON STATISTIK IN DER RESONANZFLUORESZENZ

Die Intensitätsschwankungen elektromagnetischer Felder finden ihren Ausdruck in der Statistik der Besetzungszahl seiner Moden mit Photonen. Die Intensitätsfluktuationen einer Mode werden durch das Schwankungsquadrat des Photonenzahloperators $n = a^+a$ gemessen:

$$\langle \Delta n^2 \rangle = \langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2 \quad (2.30)$$

Der nichtklassische Charakter eines Strahlungsfeldes kann sich auch in der Größe dieses Schwankungsquadrats, der Varianz von n , ausdrücken. Es ist zweckmäßig, eine vom Mittelwert der Intensität unabhängige Größe einzuführen, die den nichtklassischen Charakter eines Feldes quantifiziert. Eine solche Größe ist in der normalgeordneten Varianz

$$:Q := \frac{\langle \Delta n^2 \rangle - \langle n \rangle}{\langle n \rangle} \quad (2.31)$$

gegeben. Da bei Poisson-verteilten Besetzungszahlen $\langle \Delta n^2 \rangle = \langle n \rangle$ gilt, ist $:Q$: ein Maß für die Abweichung einer Varianz vom Wert der Poisson-Statistik. Für Poisson-besetzte Moden ist $:Q$: also Null während $:Q$: nur für klassisch nicht beschreibbare Felder negativ wird. Diese Tatsache hängt wieder eng mit dem Antibunching der Intensitätskorrelationsfunktion zusammen, wie folgende Überlegung zeigt²⁴.

Zuerst soll ein Fockzustand $|n\rangle$ betrachtet werden, der ein Eigenzustand des Photonenzahloperators ist:

$$a^+a |n\rangle = a^+\sqrt{n} |n-1\rangle = n |n\rangle \quad (2.32)$$

Durch Normierung auf das Intensitätsquadrat mit dem Operator a^+a erhält man mit Gl. (2.15) einen Ausdruck für den Erwartungswert der normierten Intensitätskorrelationsfunktion eines Zustands $|A\rangle$:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle A | a^+a^+aa | A \rangle}{\langle A | a^+a | A \rangle^2} \quad (2.33)$$

Angewendet auf den Fockzustand, also mit $|A\rangle = |n\rangle$, ergibt sich nach Gl. (2.32)

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n | a^+a^+aa | n \rangle}{\langle n | a^+a | n \rangle^2} = \frac{n(n-1)}{n^2} = 1 - \frac{1}{n} \quad (2.34)$$

Gl. (2.34) erläutert, wie der Einfluß des Detektors auf die Meßgröße das Antibunching beeinflusst: Im selben Maß, wie bei großen Besetzungszahlen $n \gg 1$ die Absorption eines Photons im Detektor vernachlässigbar wird, nähert sich auch die Korrelationsfunktion dem klassischen Grenzwert 1. Eine Verallgemeinerung von Gl. (2.34) auf beliebig besetzte Moden ist sehr einfach, da die Operatorprodukte a^+a^+aa und a^+a in der Energiedarstellung diagonal sind. Den Erwartungswert

der Operatorprodukte erhält man durch Multiplikation mit der Dichtematrix ρ und anschließende Spurbildung. Dabei werden nur die Diagonalelemente ρ_{nn} der Dichtematrix benötigt, die die Wahrscheinlichkeit angeben, daß die Feldmode mit n Photonen besetzt ist:

$$\begin{aligned} g^{(2)}(0) &= \frac{\text{Tr}(\rho \cdot \mathbf{a}^+ \mathbf{a}^+ \mathbf{a} \mathbf{a})}{(\text{Tr} \rho \cdot \mathbf{a}^+ \mathbf{a})^2} \\ &= \frac{\sum_n \rho_{nn} \langle n | \mathbf{a}^+ \mathbf{a}^+ \mathbf{a} \mathbf{a} | n \rangle}{(\sum_n \rho_{nn} \langle n | \mathbf{a}^+ \mathbf{a} | n \rangle)^2} \\ &= \frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2}{\langle n \rangle^2} \end{aligned} \quad (2.35)$$

Dieser Ausdruck kann unter Verwendung von Gl. (2.30, 2.31) in einen einfachen Zusammenhang mit der normalgeordneten Varianz gebracht werden. Man erhält

$$: Q := \langle n \rangle (g^{(2)}(0) - 1) \quad (2.36)$$

Da nur für klassisch nicht beschreibbare Felder $g^{(2)}(0)$ kleiner als Eins ist, kann auch nur für nichtklassische Felder Sub-Poisson Statistik gegeben sein. Die in den nicht direkt gemessenen Feldobservablen $\langle n \rangle$ und $g^{(2)}(0)$ formulierte Gl. (2.36) gilt in derselben Form auch für die Statistik der nach Verstärkung leicht nachweisbaren Photoelektronen. Dabei muß die durch Raumwinkelverluste, Absorption und Reflektion sowie die Konversionsverluste der Photokathode gegebene Quanteneffizienz des Detektors η berücksichtigt werden. Die Korrelationsfunktion bleibt wegen ihrer Normierung nach Gl. (2.35) unverändert, während anstelle der mittleren Photonenzahl $\langle n \rangle$ in Gl. (2.36) die im Meßintervall ΔT nachgewiesene mittlere Zahl $\langle n_e \rangle$ von Photoelektronen zu setzen ist:

$$\begin{aligned} \langle n_e \rangle &= \eta S \Delta T = R \Delta T \\ S &\quad \text{Fluoreszenzrate} \\ R &\quad \text{Photoelektronenzählrate} \end{aligned} \quad (2.37)$$

Der Zusammenhang zwischen Korrelationsfunktion und Statistik gilt in der in Gl. (2.36) ausgedrückten Form nur für infinitesimal kurze Zeitintervalle ΔT . Im allgemeinen muß $g^{(2)}(\tau)$ noch über das Meßintervall gemittelt werden. Dies führt zur Ersetzung³⁰:

$$g^{(2)}(0) \rightarrow \frac{2}{(\Delta T)^2} \int_0^{\Delta T} \int_0^{t'} g^{(2)}(\tau) d\tau dt' \quad (2.38)$$

Setzt man die so gemittelte Korrelationsfunktion zusammen mit dem Ausdruck für $\langle n_e \rangle$ in Gl. (2.36) ein, so erhält man für die meßbare Varianz der Photoelektronen:

$$Q = R \Delta T \left(\frac{2}{(\Delta T)^2} \int_0^{\Delta T} \int_0^{t'} g^{(2)}(\tau) d\tau dt' - 1 \right) \quad (2.39)$$

Um die Größenordnung dieses Ausdrucks abzuschätzen, führen wir folgende

(grobe) Näherung für das zeitliche Verhalten der Korrelationsfunktion ein:

$$g^{(2)}(\tau) = \begin{cases} g^{(2)}(0) = 0 & \text{für } \tau < \Gamma^{-1} \\ g^{(2)}(\tau \rightarrow \infty) = 1 & \text{für } \tau \geq \Gamma^{-1} \end{cases} \quad (2.40)$$

Diese Näherung ist relativ gut bei schwacher, resonanter Anregung, da dann die Korrelationsfunktion monoton von 0 auf 1 ansteigt. Bei intensiver Anregung oder großer Verstimmung treten starke Oszillationen um den asymptotischen Wert 1 auf. Bei der Integration werden sich die oszillierenden Beiträge teilweise gegenseitig auslöschen, so daß die Abweichung der gemittelten Korrelationsfunktion vom klassisch erlaubten Wert 1 kleiner ist. Auf jeden Fall können wir mit Gl. (2.40) das Maß der Abweichung einschränkend abschätzen, da die exakte Berechnung für das Integral (Gl. (2.38)) etwas größere Werte liefert als unsere grobe Abschätzung³⁰. Mit (Gl. (2.40)) erhält man:

$$\int_0^{\Delta T} \int_0^{t'} g^{(2)}(\tau) d\tau dt' = \begin{cases} 0 & \text{für } \Delta T < \Gamma^{-1} \\ \frac{1}{2}(\Delta T - \Gamma^{-1})^2 & \text{für } \Delta T \geq \Gamma^{-1} \end{cases} \quad (2.41)$$

Für sehr große und sehr kleine Meßintervalle ΔT läßt sich mit diesem Ausdruck die Varianz der Photoelektronen sehr anschaulich darstellen. Der Übergang zwischen beiden Extremen ist bei schwacher Anregung monoton³⁰:

$$Q = \begin{cases} -R\Delta T & \text{für } \Delta T \ll \Gamma^{-1} \\ -2R\Gamma^{-1} & \text{für } \Delta T \gg \Gamma^{-1} \end{cases} \quad (2.42)$$

Nach Gl. (2.37) ist die Photoelektronen-Zählrate um die Nachweiseffizienz η kleiner als die Fluoreszenzrate S des Ions. Letztere erreicht bei starker Sättigung ein Maximum von $S = \frac{1}{2}\Gamma$. Hieraus folgt dann eine obere Schranke für die Photoelektronen Zählrate von $R < \frac{1}{2}\eta\Gamma$. Mit Gl. (2.42) erhält man damit eine Abschätzung für die Varianz der Photoelektronenstatistik:

$$Q \geq -\eta \quad (2.43)$$

Die Stärke der Abweichung der Photoelektronenstatistik vom klassisch noch erlaubten Wert $Q = 0$ wird also durch die Quanteneffizienz des Detektionssystems bestimmt. Wegen apparativer Beschränkungen kann jedoch nur ein kleiner Teil der weitgehend isotrop abgestrahlten Resonanzfluoreszenz abgebildet werden. Zusammen mit den bereits genannten zusätzlichen Verlusten ergeben sich typische Werte für η von der Größenordnung 10^{-3} . Die zu erwartende Abweichung der Photoelektronenstatistik vom klassisch erlaubten Verhalten ist also klein und es bedarf einer großen Zahl von auswertbaren Ereignissen, um durch Mittelwertbildung diese kleine Abweichung signifikant nachzuweisen.

3. Speicherung und Photonenrückstoßkühlung von Ionen

Ein einzelnes ruhendes Atom, störungsfrei im Vakuum isoliert, bietet nicht nur ein vielversprechendes Potential für die ultrahochauflösende Spektroskopie, sondern ist auch Ausgangspunkt für berühmte Gedankenexperimente über die Grundlagen der Quantenmechanik.

Bei der Suche nach elektromagnetischen Speicherpotentialen für neutrale Teilchen stößt man auf die grundsätzliche Schwierigkeit, daß die geringe Kopplung über das (meist vom Speicherfeld induzierte) Dipolmoment große Feldstärken erfordert. Die Verschiebung atomarer Energieniveaus ist von der gleichen Größenordnung wie die Tiefe des Potentialtopfs, so daß trotz sehr kleiner Potentialtopftiefen etwa einer mittleren thermischen Anregung die Linienverbreiterung sehr stark ist. Mit $k_B T = \hbar \Delta \Omega$ (k_B Boltzmann-Faktor) erhält man beispielsweise bei $T = 1\text{ K}$ noch eine Linienbreite $\Delta \Omega$ von $2\pi \times 20\text{ GHz}$. Für die hochauflösende Spektroskopie müssen daher gepulste Meßverfahren mit wechselnden Speicher- und Beobachtungsperioden entwickelt werden³¹.

Bei Ionen koppelt das Feld direkt an die Ladung, so daß eine Falle mit kleinen Feldern realisiert werden kann. Deshalb sind viel kleinere Störungen zu erwarten. Im Vakuum verbietet die Poissongleichung allerdings die Existenz eines Potentialminimums, so daß nur ein dynamischer Einschluß von Ionen möglich ist.

Von besonderem Interesse sind parabolische Potentiale, in denen gespeicherte Ionen harmonische Oszillationen mit amplitudenunabhängigen Eigenfrequenzen ausführen. Der Einfluß der Bewegung auf die Observablen ist dann leicht zu kalkulieren. Das einfachste parabolische Potential ist ein rotationssymmetrisches Sattelpotential

$$\phi(r, z) = \phi_0(r^2 - z^2) \quad r^2 = x^2 + y^2, \quad (3.1)$$

das in radialer Richtung abstoßend und in axialer Richtung anziehend ist. Eine Methode, die radiale Abstoßung zu kompensieren, besteht in der Überlagerung eines homogenen axialen Magnetfeldes $\vec{B} = B_0 \vec{e}_z$, das die Ionen auf Zyklotronbahnen zwingt, denen eine langsamere Magnetron-Driftbewegung überlagert ist³². Die Potentialtopftiefe einer solchen Penningfalle ist proportional zu B_0^2 und typische Feldstärken liegen bei einem Tesla, so daß bei einer Zeemannaufspaltung der Größenordnung $\mu_B B_0 \approx 14\text{ GHz}$ (μ_B = Bohrsches Magneton) für die hochauflösende Spektroskopie nur Übergänge in Frage kommen, die in erster Ordnung magnetfeldunabhängig sind.

Die Bewegung der Ionen in der Penningfalle ist durch die Magnetrondrift instabil. Es zeigt sich nämlich, daß die Gesamtenergie sinkt, wenn der Driftradius steigt, so daß ein Einschluß nur aufgrund der Drehimpulserhaltung möglich ist³³. Diese wird durch Stöße oder durch Abweichung der Fallengeometrie von der Rotationssymmetrie aufgehoben, so daß die Ionen nur endliche Zeit gespeichert werden können. Eine Lokalisierung der Ionen im Fallenzentrum auch für längere Zeit ist möglich, indem der Magnetronbewegung Energie zugeführt wird. Dies kann durch den Photonenrückstoß der Laserstrahlung geschehen, oder, wie mit gespeicherten

Elektronen demonstriert wurde, durch eine Seitenbandanregung³⁴. Dennoch zeigten höchstauflösende Experimente an gespeicherten Berylliumionen, daß die erzielbare Genauigkeit durch den relativistischen Dopplereffekt, hervorgerufen von der kinetischen Energie der Magnetronbewegung, begrenzt ist³⁵.

3.1. SPEICHERUNG IN DER PAUL-FALLE

Eine grundsätzlich andere Möglichkeit, Ionen im Sattelpotential von Gl. (3.1) zu speichern, besteht darin, das elektrische Feld periodisch umzupolen, bevor sich das Ion merklich vom Sattelzentrum entfernt hat^{[1]36}:

$$\phi_0 = \frac{U_0 + V_0 \cos \omega_r f t}{r_0^2 + 2z_0^2} = \phi_0^{DC} + \phi_0^{AC} \cos \omega_r f t \quad (3.2)$$

Im allgemeinen wird dem Wechselfeld ϕ_0^{AC} noch ein Gleichfeld ϕ_0^{DC} überlagert, mit dem die Tiefe des resultierenden Potentialtopfs in axialer bzw. radialer Richtung variiert werden kann. Das Potential nach Gl. (3.2) kann durch Vorgabe der Spannungen U_0 und $V_0 \cos \omega_r f t$ auf den Äquipotentialflächen $r^2 - 2z^2 = r_0^2$ (einschaliger Rotationshyperboloid, gebildet durch eine Ringelektrode) und $r^2 - 2z^2 = -2z_0^2$ (zweischaliger Rotationshyperboloid, gebildet durch Polkappen) geformt werden (Bild 2). Im Experiment werden die Hyperboloide natürlich bei endlichem Radius abgeschnitten, was zu Termen höherer Ordnung im Potential führt. Diese Störung ist bei der hochauflösenden Massenspektroskopie wichtig und kann durch Zusatzelektroden teilweise kompensiert werden³⁷, ist jedoch völlig vernachlässigbar, wenn das Aufenthaltsgebiet einzelner Teilchen auf das Zentrum beschränkt bleibt.

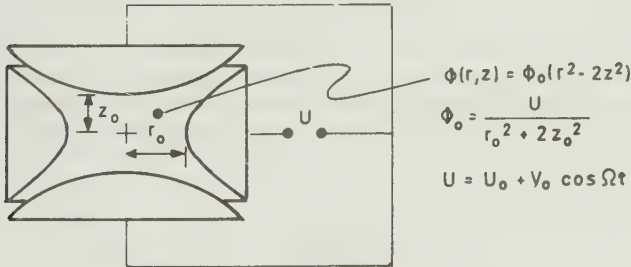


Bild 2: Elektrodenanordnung zur Erzeugung des Quadrupolpotentials

Selbstverständlich müssen für einen stabilen Einschluß Spannung, Frequenz des Umpolens und spezifische Ladung des Ions aufeinander abgestimmt sein. Dieser Zusammenhang wird quantifiziert durch die Lösung der Differentialgleichung

[1] Die in diesem Kapitel gewählte Notation folgt einer Darstellung von Wineland et al.

für die Ionenbewegung im Potential der Gln. (3.1, 3.2) und die Festlegung der Parameter, bei denen die Lösung beschränkt bleibt:

$$\begin{aligned} \frac{d^2 x_i}{d\vartheta^2} + (a_i - 2q_i \cos 2\vartheta) x_i &= 0 \quad i = x, y, z \\ \text{mit} \\ a_x = a_y \equiv a_r &= -\frac{1}{2} a_z = \frac{8eU_0}{m\omega_{rf}^2(r_0^2 + 2z_0^2)} \\ q_x = q_y \equiv q_r &= -\frac{1}{2} q_z = \frac{-4eV_0}{m\omega_{rf}^2(r_0^2 + 2z_0^2)} \\ \vartheta &= \frac{\omega_{rf} t}{2} \quad \text{und} \quad \frac{e}{m} = \text{spezifische Ladung} \end{aligned} \quad (3.3)$$

Gl. (3.3) ist die Mathieusche Differentialgleichung, deren Eigenschaften in der Literatur ausführlich diskutiert werden³⁸. Gebiete in der (a, q) -Ebene, die zu beschränkten Bewegungen führen, lassen sich auf einer Stabilitätskarte darstellen. Von besonderem Interesse ist der adiabatische Grenzfall ($a_i, q_i \ll 1$), der dadurch definiert ist, daß sich das Ion während einer Oszillationsperiode des Speicherfeldes nur um eine sehr kleine Strecke $s \ll r_0, z_0$ bewegt. In diesem Fall wird die Ionenbewegung durch eine langsame Säkularschwingung mit der Frequenz ω_i in einem Pseudopotential Ψ beschrieben, der eine schnelle 'Mikro'-modulation überlagert ist. Für ein reines Wechselfeld ($a_i = 0$) gilt³⁹:

$$x_i(t) = x_i^0 \left(1 + \sqrt{2} \frac{\omega_i}{\omega_{rf}} \cos \omega_{rf} t\right) \cos \omega_i t \quad i = r, z \quad (3.4)$$

Die maximale Geschwindigkeitsamplitude der Mikrobewegung ist um den Faktor $\sqrt{2}$ größer als die Geschwindigkeitsamplitude der Säkularbewegung. Gl. (3.4) zeigt, daß die (über eine ω_{rf} -Periode) gemittelte kinetische Energie der Mikrobewegung das Pseudopotential bestimmt. (Dies gilt allgemein für die Bewegung im schnell oszillierenden Potential⁴⁰.) Bei nichtverschwindenden a_i addiert sich zum Pseudopotential der Mikrobewegung das Gleichspannungspotential $\phi_0^{DC}(r^2 - 2z^2)$. Insgesamt erhält man für das Potential Ψ der Säkularbewegung³⁶:

$$\begin{aligned} \Psi(r, z) &= \left(\frac{1}{2} m \omega_{rf}^2 r^2 + \frac{1}{2} m \omega_z^2 z^2\right) \\ &= e \left(\frac{q_z}{8} \phi_0^{AC} + \phi_0^{DC}\right) r^2 + e \left(\frac{q_z}{2} \phi_0^{AC} - 2 \phi_0^{DC}\right) z^2 \\ &= \frac{D_r}{r_0^2} r^2 + \frac{D_z}{z_0^2} z^2 \end{aligned} \quad (3.5)$$

(r, z) sind die über eine Periode der Mikrobewegung gemittelten Ortskoordinaten und D_r bzw. D_z bezeichnen die Potentialtopftiefe für die radiale bzw. die axiale Bewegung. Es ist bei der Speicherung einzelner Ionen zweckmäßig, den Potentialtopf in radialer und in axialer Richtung unterschiedlich steil zu wählen, da es bei entarteten Eigenschwingungen eine Schwingungsmoden senkrecht zur Laserstrahlachse gibt, die nicht gekühlt werden kann. (Durch Fertigungsungenau-

igkeiten ist im allgemeinen auch die Entartung der radialen Eigenschwingungen aufgehoben.) Mit Gl. (3.2–3.3, 3.5) lassen sich die Säkularfrequenzen direkt durch die Stabilitätsparameter ausdrücken:

$$\omega_i = \frac{1}{2} \sqrt{a_i + \frac{1}{2} q_i^2} \cdot \omega_{rf} \quad i = r, z \quad (3.6)$$

Die bisherigen Betrachtungen gelten nur für einzelne gespeicherte Ionen. Bei der Speicherung sehr vieler Ionen muß der Einfluß der Raumladung auf das Potential in der Ionenfalle berücksichtigt werden. Im Pseudopotential nach Gl. (3.5) wird sich eine gekühlte Ionenwolke ($T=0K$) so anordnen, daß ihr Raumladungspotential ϕ_R das Pseudopotential gerade kompensiert:

$$-e\phi_R = \Psi \quad (3.7)$$

Durch Anwendung des Laplaceoperators Δ auf Gl. (3.7) läßt sich wegen $\Delta\phi_R = 4\pi\rho$ die Ladungsdichte ρ der Ionenwolke bei maximaler Kühlung bestimmen:

$$\rho = -\frac{1}{e} \left(\frac{D_r}{\pi r_0^2} + \frac{D_z}{2\pi z_0^2} \right) \quad (3.8)$$

Sie ist konstant und proportional zur Potentialtopftiefe. Unter dem Einfluß von Stößen mit schweren Restgasionen wird Energie aus dem Speicherfeld in die Säkularbewegung gekoppelt³⁹, so daß die Temperatur der Ionenwolke ohne Kühlmechanismus sehr hoch ist. Sie entspricht einer kinetischen Energie von etwa 10% der Pseudopotentialtopftiefe⁴¹ und hat eine kleinere Ionendichte zur Folge, als nach Gl. (3.8) erwartet wird.

3.2. DIE KÜHLUNG VON GESPEICHERTEN IONEN

Die Dopplerverbreiterung ultravioletter Spektrallinien durch die Einkoppelung von Energie aus dem Speicherfeld in die Mikrobewegung beträgt selbst bei moderaten Potentialtopftiefen von einigen Elektronenvolt schon etliche GHz. Dies führt zu einem drastischen Rückgang der Streurate, da die Ionen nur noch einen Bruchteil der Zeit in Resonanz mit der Laserstrahlung sind. Im hier beschriebenen Experiment war dieser Effekt so stark, daß es schwierig war, ungekühlte große Ionenwolken überhaupt durch ihre Resonanzfluoreszenz nachzuweisen. Eine einfache Möglichkeit der Kühlung besteht im Einlassen eines leichten Puffergases (im allgemeinen Helium), in dem sich die gespeicherten Ionen wie in einer viskosen Flüssigkeit bewegen und bis auf Zimmertemperatur gekühlt werden können^{42–43}. Im hier beschriebenen Experiment konnte die nachgewiesene Resonanzfluoreszenz durch Helium-Puffergaskühlung um den Faktor 500 verstärkt werden (vgl. Kap.5.). Tiefste Temperaturen im Millikelvinbereich werden in der Paul-Falle allerdings nur mit einzelnen Ionen erreicht, denn nur ein einzelnes Ion kann im Zentrum des Sattelpotentials lokalisiert werden, wo die Feldstärke verschwindet. Bereits zwei Ionen werden durch die Coulombabstoßung vom Zentrum weggedrückt und vom Speicherfeld zu erzwungenen Schwingungen angeregt. Jedoch wird auch ein einzelnes Ion unmittelbar nach seiner Erzeugung im Pseudopotential mit großer

Amplitude oszillieren. Die zugehörige kinetische Energie hängt von Ort und Zeitpunkt der Ionisation ab und ist im allgemeinen von gleicher Größenordnung wie die Potentialtopftiefe. Eine Kühlung kann durch den Photonenrückstoß der Laserstrahlung auf die gespeicherten Ionen bei der Resonanzstreuung erfolgen. Dieser Mechanismus soll exemplarisch für die z-Koordinate im Grenzfall schwacher Bindung diskutiert werden. Dafür gilt, daß die Schwingungsfrequenz des harmonisch gebundenen Ions klein ist im Vergleich zur natürlichen Linienbreite des angeregten Übergangs:

$$\omega_z \ll \Gamma \quad (3.9)$$

Nach der Erzeugung des Ions ist die Dopplerverbreiterung $\Delta\omega_D$ im allgemeinen viel größer als die natürliche Linienbreite Γ :

$$\Delta\omega_D \approx \langle v \rangle \frac{\omega_0}{c} \gg \Gamma \quad (3.10)$$

$\langle v \rangle$ mittlere Geschwindigkeit des Ions

Ein auf die langwellige Flanke des Resonanzprofils verstimmter Laser ($\omega_L = \omega_0 - \Delta\omega_D$) gerät dann während einer Oszillationsperiode $\frac{2\pi}{\omega_z}$ für kurze Zeit in Resonanz. Das Ion bewegt sich dabei mit der mittleren Geschwindigkeit $\langle v \rangle$ auf den Laserstrahl zu und kann aus dem Strahl Photonen absorbieren. Jedes absorbierte Photon überträgt dabei einen Impuls $\vec{P}_A = \vec{e}_z \frac{\hbar\omega_L}{c}$ auf das Ion, wobei $\vec{e}_z$ ein der Bewegung entgegengerichteter Einheitsvektor ist. Bei der spontanen Reemission wird wieder ein Impuls $\vec{P}_E = \vec{e}_E \frac{\hbar\omega_L}{c}$ auf das Ion übertragen. Dabei ist jedoch aufgrund der symmetrischen Abstrahlcharakteristik $\int \vec{e}_E d\Omega = 0$ und daher der mittlere Impulsübertrag $\langle \vec{P}_E \rangle$ Null. Der mittlere Energieübertrag ist also gegeben durch

$$\begin{aligned} \Delta E &= -\Delta\left(\frac{P^2}{2m}\right) = -\frac{P}{m}\Delta P = -\langle v \rangle \frac{\hbar\omega_L}{c} \\ P &= \text{Impuls des Ions} \\ \Delta P &= \text{Impulsübertrag durch das Photon} \\ m &= \text{Masse des Ions} \end{aligned} \quad (3.11)$$

und mit Gl. (3.10) erhält man $\Delta E = -\hbar(\omega_0 - \omega_L)$, so daß die Photonenrückstoßkühlung auch durch eine Energiebilanz beschrieben werden kann: Bei jedem Streuvorgang wird die Energiedifferenz zwischen Laserphoton ($E = \hbar\omega_L$) und Anregungsenergie ($E = \hbar\omega_0$) der kinetischen Bewegung entzogen. Man erhält einen für das Experiment sehr wichtigen Anhalt für die Kühlleistung, wenn man den Energieübertrag ΔE mit der mittleren Streurrate $\langle S \rangle$ multipliziert:

$$\frac{dE}{dt} = \langle S \rangle \Delta E \quad (3.12)$$

Bei kleinen Intensitäten unterhalb der Sättigungsschwelle ist die momentane Streurrate gegeben durch

$$S = \frac{I}{\hbar\omega_L} \sigma(\omega_L) \quad (3.13)$$

Dabei ist $\sigma(\omega_L)$ der Wirkungsquerschnitt für die Absorption im Ruhesystem des Ions. Seine Frequenzabhängigkeit wird durch eine Lorentzverteilung beschrieben:

$$\sigma(\omega_L) = \sigma_0 \frac{(\frac{1}{2}\Gamma)^2}{(\omega_L - \omega_0)^2 + (\frac{1}{2}\Gamma)^2} \quad (3.14)$$

Für Dipolübergänge mit angepaßter Polarisation hängt der resonante Wirkungsquerschnitt σ_0 dabei nur von der Wellenlänge ab¹⁵: $\sigma_0 = \frac{3}{2\pi}\lambda^2$. Es muß jetzt noch berücksichtigt werden, daß das Ion aufgrund der Geschwindigkeitsmodulation nur kurze Zeit mit der Laserstrahlung in Resonanz ist. Bei thermalisierten Ionen kann dies durch eine Faltung des Lorentzprofils Gl. (3.14) mit einer Boltzmannverteilung geschehen. Im Grenzfall hoher Temperaturen, der ja mit Gl. (3.10) angenommen wurde, ist die resultierende Verteilung wieder eine Gaußverteilung. Für die Kühlleistung erhält man damit nach Zusammenfügen aller Faktoren¹⁵

$$\frac{dE}{dt} = -\left(\frac{I}{\hbar\omega_L}\right)\sigma_0\left(\frac{\Gamma}{\Delta\omega_D}\frac{\sqrt{\pi}}{2}e^{-\left(\frac{\omega_L - \omega_0}{\Delta\omega_D}\right)^2}\right)(\hbar\omega_0 - \hbar\omega_L) \quad (3.15)$$

Aus dieser Beziehung erhält man die maximale Kühlleistung bei einer Verstimmung $(\omega_0 - \omega_L) = \frac{\Delta\omega_D}{\sqrt{2}}$. Eine optimale Kühlung wird erreicht, wenn die Laserfrequenz der im Verlauf des Kühlprozesses sinkenden Dopplerbreite nachgeführt wird. Eine Verstimmung über mehrere GHz ist experimentell allerdings schwer zu realisieren, da

1. der Resonator für die Frequenzverdopplung im Lock gehalten werden muß und
2. am Ende der Kühlperiode die Laserfrequenz reproduzierbar etwa eine halbe natürliche Linienbreite ($2\pi \times 20\text{MHz}$) von der Mg^+ -Resonanz stehen muß.

Als Kompromiß wurde die Laserfrequenz zur Kühlung $2\pi \times 700\text{MHz}$ verstimmt und zum Nachweis in Resonanznähe umgeschaltet. Die anderen für die Kühlung wesentlichen Parameter sind mit typischen experimentellen Werten in folgender Tabelle zusammengefaßt:

$$\begin{aligned} I &= 1\text{W/cm}^2 \\ \Delta\omega_D &= 2\pi \times 22\text{GHz} \\ \Gamma &= 2\pi \times 43\text{MHz} \\ \omega_L &= 2\pi \times \frac{c}{280\text{nm}} \end{aligned} \quad (3.16)$$

Der Intensitätsangabe wurde eine effektive Fokusfläche von $A = 5 \times 10^{-4}\text{cm}^2$ zugrunde gelegt. Die Dopplerbreite entspricht einer Oszillation des Magnesium-Ions mit der Frequenz $\omega_z = 2\pi \times 1\text{MHz}$ und der Maximalamplitude von $z_{\text{max}} = 1\text{mm}$, die gegeben ist, wenn das Ion am Rand des Kreuzungsgebiets von Atom- und Elektronenstrahl erzeugt wurde. Für diese Werte erhält man mit Gl. (3.15) eine Kühlgeschwindigkeit von -3eV/s . Im Experiment ist die Kühlleistung allerdings viel kleiner, weil sich das oszillierende Ion nur kurze Zeit im Fokus befindet, der

möglichst klein gewählt wurde, um nach der Kühlung ein hohes Signal zu erzielen. Der Bruchteil der Zeit, den das Ion sich im Fokus aufhält, wird mit dem Geometriefaktor $\sqrt{\frac{A}{(2z_{\max})^2}}$ abgeschätzt, der mit den angegebenen Werten bei 11% liegt. Zur Lokalisation eines mit der Maximalenergie von 5eV erzeugten Ions ist also eine Kühlzeit in der Größenordnung von zehn Sekunden zu erwarten, ein Wert, der auch im Experiment beobachtet werden konnte (vgl. Kap.5.).

Bei der bisherigen Betrachtung des Kühlvorgangs wurde die Rückstoßenergie R vernachlässigt. Sie ist mit $R = \frac{p^2}{2m} = \frac{(\hbar\omega_L)^2}{2mc^2} = 4.4\text{eV} \frac{4.4\text{eV}}{2mc^2} \ll 5\text{eV}$ sehr klein gegen die kinetische Anfangsenergie. (Die Ruheenergie mc^2 ist mit $2.2 \times 10^{10}\text{eV}$ sehr groß im Vergleich zur Energie eines 280nm-Photons von 4.4eV.) Bei Annäherung an die Minimaltemperatur dominiert die Rückstoßenergie jedoch den Kühlvorgang. Obwohl der Mittelwert des Impulsübertrags bei der spontanen Emission verschwindet, da die Richtung des emittierten Photons unbestimmt ist, wird bei jedem Streuvorgang ein endlicher Impulsbetrag auf das Ion übertragen. Dies führt zu einem Diffusionsprozeß im Impulsraum, der die kinetische Energie des Ions erhöht. Setzt man die hierzu äquivalente Heizleistung mit der oben betrachteten Kühlleistung gleich, so erhält man eine minimale kinetische Energie von¹⁵ $\langle E_{\text{kin}} \rangle = \frac{1}{4}\hbar\Gamma$.

Es zeigt sich, daß die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des gekühlten Ions in den Anregungsstufen des harmonischen Oszillatorpotentials einer Boltzmannverteilung gehorcht⁴⁴, so daß es sinnvoll ist, der minimalen Energie eine Temperatur $T = \frac{2\langle E_{\text{kin}} \rangle}{k_B}$ (k_B Boltzmannfaktor) zuzuordnen und von Strahlungsdruckkühlung zu sprechen. Diese Tatsache ist bemerkenswert, da ja in der klassischen (nicht Quanten-) Statistik der Temperaturbegriff erst bei Systemen mit einer großen Zahl von Freiheitsgraden sinnvoll ist, während hier nur ein Freiheitsgrad betrachtet wurde!

Mit $\langle E_{\text{kin}} \rangle = \frac{1}{4}mz_{\min}^2\omega_z^2$ ergibt sich aus der minimalen kinetischen Energie auch die Ausdehnung $z_{\min}$ des Gebiets, auf das ein gespeichertes Ion bestenfalls lokalisiert werden kann. Für das Magnesium-Ion erhält man mit den oben genannten Parametern eine Lokalisierung auf $2z_{\min}=270\text{nm}$. Trotz der großen natürlichen Linienbreite des Dipolübergangs und des bei einer Säkularfrequenz von $2\pi \times 1\text{MHz}$ noch relativ flachen Potentialtopfs ist der Aufenthaltsort auf ein Gebiet beschränkt, das kleiner ist als die Wellenlänge des anregenden Lichts! Eine noch stärkere Eingrenzung des Aufenthaltsgebiets eines einzelnen Ions ist durch Wahl eines steileren Potentials oder durch Kühlung mit einem Übergang kleinerer natürlicher Linienbreite möglich.

Der Bereich $z_{\min} \ll \lambda$ ist für die Spektroskopie sehr interessant, da das Laserfeld $E(t) = E_0 \cos \phi(t)$ im Ruhesystem des Ions nur noch mit kleiner Amplitude phasenmoduliert ist. Aus der durch den Dopplereffekt modulierten Laserfrequenz $\omega(t) = \omega_L(1 + \frac{v(t)}{c}) = \omega_L(1 + \frac{\omega_z z_{\min}}{c} \cos \omega_z t)$ erhält man durch Integration über die Zeit die zugehörige Phase: $\phi(t) = \int \omega(t)dt = \omega_L t + \frac{\omega_L}{c} z_{\min} \sin \omega_z t$. Das Ion

sieht also ein Laserfeld

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_L t + \beta \sin \omega_z t) \quad (3.17)$$

Für den zur Schwingungsamplitude proportionalen Phasenhub $2\pi \times \frac{z_{\min}}{\lambda}$ ist dabei der Modulationsindex β eingesetzt worden. Das Spektrum des Laserfeldes läßt sich bequem aus einer Darstellung ablesen, bei der $E(t)$ nach Besselfunktionen entwickelt wird⁴⁵:

$$\begin{aligned} E(t) = E_0 \sum_{n=0}^{\infty} J_n(\beta) \cos[(\omega_L + n\omega_z)t] \\ + E_0 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n J_n(\beta) \cos[(\omega_L - n\omega_z)t] \end{aligned} \quad (3.18)$$

Die Koeffizienten $J_n(\beta)$ sind durch den Wert der Besselfunktion n -ter Ordnung an der Stelle β gegeben. Sie konvergieren für $\beta \ll 1$ mit wachsendem n schnell gegen Null. Bei enger Lokalisierung des Ions wird daher der Einfluß der Bewegung auf das Spektrum immer kleiner, da ein großer Teil der Energie des Spektrums bei der Zentralfrequenz ω_L liegt. Man nennt die Lokalisierung eines Teilchens auf ein Gebiet klein im Vergleich zur Wellenlänge den Lamb-Dicke-Bereich, da R.H. Dicke zeigte⁴⁶, daß für beliebige Potentiale eine zu Gl. (3.18) analoge Beziehung besteht, nach der das Spektrum dann durch einen starken Träger mit schwachen Seitenbändern beschrieben wird. In diesem Bereich wird der lineare Dopplereffekt unterdrückt und der quadratische Dopplereffekt proportional zur kinetischen Energie stark reduziert:

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{1}{2} \left(\frac{v}{c} \right)^2 = \frac{k_B T}{2mc^2} \quad (3.19)$$

Die niedrigste Temperatur bisher wurde mit einem einzelnen Magnesium-Ion in einer Paul-Falle mit 5_{-5}^{+15} mK erreicht¹⁸. Der quadratische Dopplereffekt ist dabei nach Gl. (3.19) auf 1×10^{-17} reduziert. Die große Schwankungsbreite der Temperaturangabe weist auf die Schwierigkeiten bei der Temperaturmessung hin, die auf einer Auswertung der Halbwertsbreite des Anregungsspektrums beruhte. Dieses Verfahren ist aus mehreren Gründen problematisch:

1. Beim Durchstimmen des Lasers ändert sich nach Gl. (3.15) die Kühlleistung, so daß während des Meßvorgangs die Temperatur des Ions variiert.
2. Es kann nur die langwellige Hälfte des Spektrums gemessen werden, da bei Erreichen der Resonanzfrequenz der Laserstrahl abgeblockt werden muß, um das Ion nicht durch Aufheizen zu verlieren. Beide Effekte erschweren die Berechnung einer Ausgleichskurve, aus deren Parametrisierung die Temperatur hergeleitet wird.
3. Die Restdopplerbreite ist sehr klein im Vergleich zur natürlichen Linienbreite, die zudem bei starker Kühlung noch sättigungsverbreitert ist. Der thermische Anteil am Spektrum kann daher erst nach einer Extrapolation mehrerer Messungen auf verschwindende Laserintensitäten ermittelt werden.

In der vorliegenden Arbeit wird eine Methode aufgezeigt, die mit einer einzigen Messung die Bestimmung der Temperatur bei für die Kühlung optimaler Laserleistung und Verstimmung ermöglicht. Dabei wird eine von der Eigenbewegung des Ions hervorgerufene Modulation der Intensitätskorrelationsfunktion ausgewertet. Das Verfahren wird im einzelnen in Kap.7 dieser Arbeit besprochen.

4. Experimentelle Anordnung zur Speicherung und Kühlung von Ionen

4.1. BESCHREIBUNG VON VAKUUMAPPARATUR UND IONENFALLE

4.1.1. VAKUUMSYSTEM

In einer Ionenfalle können lange Speicherzeiten nur bei extrem niedrigen Restgasdrücken erzielt werden, da durch Stöße mit *schweren* Restgasmolekülen die Phasenbeziehung der Ionenbewegung relativ zur Phase der Speicherfeldoszillation geändert wird. Dies führt zu einer Übertragung von Energie aus dem Speicherfeld in die thermische Bewegung der Ionen³⁹.

Die zur Erreichung tiefster Drücke notwendige Ultrahochvakuum (UHV)-Technologie⁴⁷ prägt die Konzeption der Ionenfalle. Bei Drücken im Bereich kleiner als 10^{-8} mb ist der überwiegende Teil des Restgases an den Innenwänden des Vakuumsystems adsorbiert, von wo es bei Zimmertemperatur nur sehr langsam abgepumpt werden kann. Um Drücke im Bereich von $10^{-10} - 10^{-11}$ mb in akzeptabler Zeit zu erreichen, muß die gesamte Vakuumapparatur mehrere Tage bei $200^{\circ} - 400^{\circ}\text{C}$ ausgeheizt werden, so daß zur Konstruktion der Anlage nur temperaturfeste Materialien mit niedrigem Dampfdruck verwendet werden dürfen. Das hier beschriebene UHV-System verwendet ausschließlich Edelstahl, Glas, Quarz, Keramik, Macor (fräsbare Keramik), sauerstoffreies OFHC-Kupfer sowie geringe Mengen Molybdän, Wolfram, und Tantal. Vor dem Zusammenbau werden alle Teile sorgfältig mit Aceton und Propanol gereinigt und anschließend mit destilliertem Wasser gespült. Danach dürfen alle Bestandteile nur noch mit Handschuhen berührt werden, so daß der teilweise diffizile Zusammenbau der Apparatur (vgl. Bild 3) viel Geduld erfordert.

Der Rezipient wird von einer zweistufigen Drehschieberpumpe^[2], einer Turbomolekularpumpe^[3] und einer Ionengetterpumpe^[4] abgepumpt. Zwischen Turbomolekularpumpe und Rezipient befindet sich ein UHV-Schieber, mit dem der Rezipient von den mechanisch bewegten Pumpen abgekoppelt werden kann. Der

[2] Fa. Leybold, D16 B

[3] Fa. Leybold, Turbovac 360

[4] Fa. Varian, StarCell 60

Restgasdruck kann mit einem Ionisationsvakuummeter^[5] mit einer Empfindlichkeit von 1×10^{-12} mb gemessen werden. Nach dem Ausheizen der Anlage für einige Tage bei 250°C wurde ein Restgasdruck von 6×10^{-11} mb erreicht.

4.1.2. IONENFALLE

Da bei Beginn der Arbeiten im Institut noch keine Erfahrungen im Umgang mit Ionenfallen vorlagen, wurde die Anlage so ausgelegt, daß jede zur Ionen-speicherung nötige Funktion separat überprüfbar ist und darüber hinaus leicht Änderungen an der Apparatur vorgenommen werden können. Das Herz der Anlage mit den potentialbestimmenden Elektroden, der Elektronenquelle und dem optischen Abbildungssystem befindet sich als Modul auf einer CF35 UHV Stromdurchführung^[6] (Bild 3). Die Elektroden wurden auf einer numerisch gesteuerten Drehbank aus OFHC-Kupfer mit einer Präzision von 20µm gedreht. Für die Beobachtung der Resonanzfluoreszenz und zum Einschießen des Elektronenstrahls sind die Endkappen konisch durchbohrt. Um die Feldverzerrung durch die Bohrung klein zu halten, wird die Endkappe mit einem vorgeformten Netz aus verkupfertem Molybdän überdeckt, das mit einem Kupferspannring festgehalten wird. Zur Formung wird das weiche Molybdännetz^[7] über eine hyperbolische Plastikmaske gespannt und durch Aufgalvanisieren von Kupfer fixiert. Die relative Lage der Ringelektrode zu den Endkappen wird mit einer Genauigkeit von 20µm durch Distanzstücke aus Macor festgelegt. Da Kupfer durch den Ausheizprozeß sehr weich wird, wurde auf eine Befestigung der positionsempfindlichen Bestandteile der Ionenfalle durch Verschraubungen gänzlich verzichtet. Stattdessen wurden alle Teile mit ringförmigen Passungen gedreht, aufeinandergesteckt und mit einer temperaturfesten Inconelfeder zusammengedrückt.

Das Elektrodensystem ist mit einem Ringelektroden Durchmesser von 5mm und einem Polkappenabstand von 3.54mm wesentlich größer als andere zur Speicherung einzelner Ionen verwendeter Apparaturen^{16,17,18,19}. Besonders zu Beginn der Experimente, als noch keine Erfahrungen zur Ionen Speicherung vorlagen, war das große Speichervolumen sehr vorteilhaft. Bei gegebener Potentialsteilheit ist die maximale Ionendichte vorgegeben (vgl. Kap.3.1.) und demzufolge die maximal speicherbare Ionenzahl proportional zum Volumen der Ionenfalle. Es ist daher mit großen Ionenfallen leichter, überhaupt ein Fluoreszenzsignal nachzuweisen und das Funktionieren des Ladens und Speicherns zu demonstrieren.

Ob die Größe der Ionenfalle beim Speichern und Kühlen *einzelner* Ionen entscheidend ist, war nicht von vornherein klar. Als Vorteil gilt die relativ geringe Empfindlichkeit des Quadrupolfeldes gegenüber Verzerrungen durch Oberflächenpotentiale. Diese können durch eine Magnesiumbedampfung der Elek-

[5] Fa. Leybold Ionivac IM510 mit Einbaumeßsystem IE 511

[6] Fa. Balzers, Meßstromdurchführung UMD335

[7] erhältlich mit Maschenweite 200µm und Drahtdicke 20µm bei Fa. Eyring, Karlsruhe

troden oder eine elektrostatische Aufladung der Macordistanzstücke durch den Elektronenstrahl hervorgerufen werden.

Weiterhin gestattet es die relativ große Apertur zwischen Ringelektrode und Polkappen mit einer Öffnung von $1.0 \times 3.0 \text{ mm}$, einen Gaußschen Laserfokus⁴⁸ mit sehr geringer Streuung durch das Fallenzentrum zu justieren. Dank der großen Polkappen ist es zudem möglich, die Fluoreszenz durch eine Bohrung in der Polkappe mit guter Raumwinkeleffizienz zu beobachten.

Als Nachteil der großen Ionenfalle muß die nach der Erzeugung zunächst sehr schlechte Lokalisierung eines einzelnen Ions gesehen werden. Für die Experimente mit Magnesium-Ionen konnte aber aufgrund der hohen Kühlleistung des schnellen Dipolübergangs eine Einengung der Bewegung auf ein Gebiet klein gegen die Strahltille in weniger als einer Minute erwartet werden (vgl. Kap.3.2.).

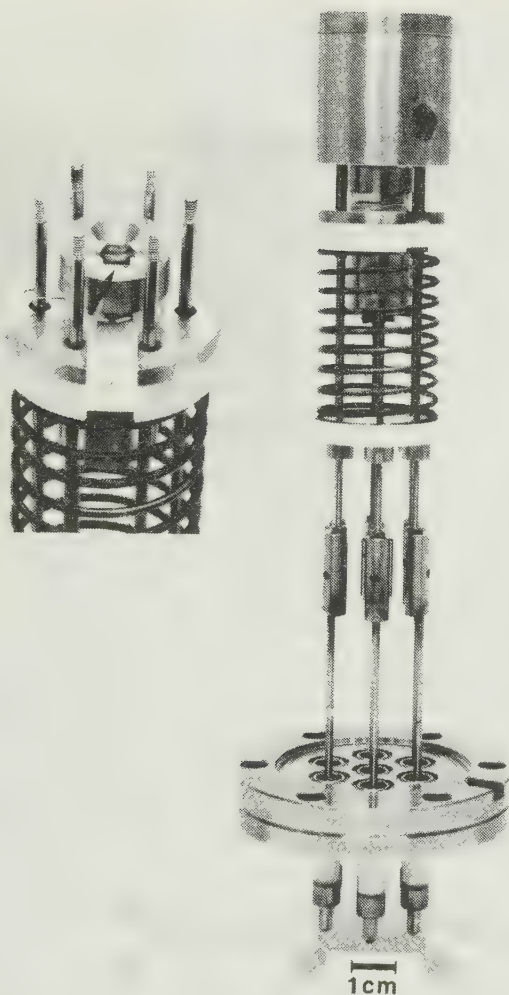
Die Abbildungsoptik soll nicht nur einen möglichst großen Raumwinkel erfassen, sondern auch das in guter Näherung punktförmige Ion möglichst verzerungsarm außerhalb des Vakuums abbilden, damit das Fluoreszenzlicht vom diffusen Streulicht mit einer Blende ausgefiltert werden kann. Für das Experiment wurde ein dreilinsiges Quarzobjektiv^[8] umgearbeitet. Die Frontlinse wurde auf einen Durchmesser von 12mm abgeschliffen und die kommerzielle Messingfassung durch eine Edeldstahlfassung ersetzt, in der das Linsensystem relativ zum Zentrum der Ionenfalle justiert werden kann. Die für die vorgesehene Abbildungsgeometrie richtige Gegenstandsweite wurde vorher experimentell mit Licht der Wellenlänge 280nm ermittelt. Der vom Linsensystem erfasste Raumwinkel von $4\pi \times 5.6\%$ wird noch vergrößert durch einen hinter der gegenüberliegenden Endkappe liegenden Hohlspiegel. Dieser dient gleichzeitig als Anode für die Elektronenquelle und ist hierzu mit einer zentrischen Bohrung versehen. Es zeigte sich bei den Experimenten mit einzelnen Ionen, daß mit dieser Anordnung eine im Vergleich zu bisher veröffentlichten Resultaten größere Nachweiseffizienz erzielt werden konnte^{16,17,18,19}. Das außerhalb des Vakuums liegende Bild der Ionen wird mit einer Quarzlinse auf die Kathode eines Photomultipliers^[9] abgebildet. Dieser befindet sich in einem Kühlgehäuse, das mit Peltierelementen auf -30°C abgekühlt werden kann^[10]. Bei dieser Temperatur und bei einer Kathodenspannung von 1.9KV liegt die Dunkelpulsrate nur noch bei etwa 20 Hz und ist damit vernachlässigbar gegen die Streulichttrate im KHz-Bereich. Die Ausgangspulse des Photomultipliers werden verstärkt und von einem Digitalzähler aufaddiert, der über einen IEEE488-Bus mit einem CBM8296-Minicomputer verbunden ist.

Die Elektronen der Elektronenquelle werden von einem thorierten Wolframdraht abgedampft, von einem Wehneltzylinder fokussiert und mit -100V gegen die

[8] Kollimator 100 der Fa. Carl Zeiss, Göttingen

[9] Fa. RCA, Modell CA31034A-02

[10] Fa. Products for Research, Kühlkammer TE 210 TSRF



*Bild 3: Ionenfallenmodul mit vergrößerter Teilansicht des Elektrodensystems.
Zwischen Polkappe und Ringelektrode (Pfeil) ist die Apertur für den Laserstrahl zu sehen.*

auf Massepotential liegende Anode beschleunigt. Ein Teil des Elektronenstrahls fließt vom Maschennetz über einen Widerstand zur Masse. Auf diese Weise kann der Strahlstrom über den Spannungsabfall gemessen und durch das Potential am Wehneltzylinder optimiert werden.

Der Elektronenstrahl muß im Innern der Falle von einem Atomstrahl gekreuzt werden, da nur im Potential selbst erzeugte Ionen gespeichert werden können. Der Atomstrahllofen besteht aus einer 30mm langen Edelstahlkapillare mit einem Innendurchmesser von 0.5mm, die mit einem Magnesiumdraht gefüllt und am Ende verschlossen wird, nachdem die Kapillarachse exakt auf den Spalt zwischen Endkappen und Ringelektrode ausgerichtet worden ist. Der Ofen wird mit einer Wicklung aus Wolframdraht (Durchmesser $100\mu\text{m}$) beheizt, die durch ein Aluminiumoxidröhrchen von der Kapillare isoliert wird. Mit dieser Anordnung wurde ein Kompromiß zwischen den Forderungen nach kleiner Wärmekapazität und einer justierbaren, wohldefinierten Strahlrichtung geschlossen.

Der Laserstrahl gelangt durch aufgeschmolzene Brewsterfenster aus Quarz in das Vakuumsystem und wird ebenfalls durch den asymptotischen Spalt zwischen Polkappen und Ringelektrode geführt. Streulicht von den Fenstern wird mit Kupferoxid-geschwärzten Blenden herausgefiltriert.

Die Anordnung zur Erzeugung des Hochfrequenzspeicherfeldes ist in Zusammenhang mit der später besprochenen Nachweiselektronik in Kap.5.2. dargestellt. In einem Resonanztransformator wird die niederohmig (50Ω) auf bis zu 15W verstärkte $2\pi \times 11\text{MHz}$ Sinusschwingung eines Frequenzgenerators auf Hochspannung transformiert. Die Spannung an der Ringelektrode kann über einen bei $2\pi \times 11\text{MHz}$ geeichten Spannungsteiler auf einem Monitor gemessen werden. Am Fußpunkt der Sekundärspule wird der Gleichspannungsanteil des Speicherpotentials eingespeist. Um eine möglichst hohe Güte des Resonanztransformators und damit hohe Spannungen zu erzielen, wurden Luftspulen aus vergoldetem Kupferdraht gewickelt, die von dielektrisch verlustarmen Keramik- und Teflonhaltern gestützt werden. Hochfrequente Störstrahlung wird von einem Metallgehäuse abgeschirmt, das die Elektronik zur Vermeidung von Wirbelstromverlusten großvolumig umschließt.

Ein Überblick über die wichtigsten Kenngrößen der Apparatur und typische Betriebs-Parameter ist in Tabelle 1 zusammengestellt.

4.2. BESCHREIBUNG DES LASERSYSTEMS

Das Lasersystem hat die Aufgabe, das für die Spektroskopie des $\text{Mg}^+ 3^2S_{1/2} \rightarrow 3^2P_{3/2}$ Übergangs benötigte Licht bei der Wellenlänge 280nm mit genügender Leistung zur Verfügung zu stellen. Im Experiment zur Messung der Intensitätskorrelationsfunktion ist es aus zwei Gründen besonders wichtig, für die Sättigung des Übergangs ausreichende Intensität zur Verfügung zu stellen:

1. Der Vergleich der Intensitätsabhängigkeit von $g^{(2)}(\tau)$ mit der Theorie ist nur bei sehr hohen Intensitäten interessant, da bei schwacher Anregung

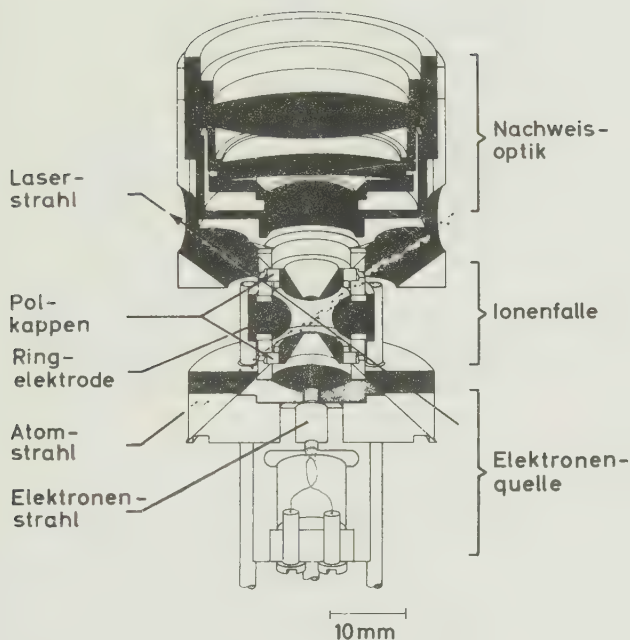


Bild 4: Schnittzeichnung des Ionenfallenmoduls. Die im Kreuzungsgebiet von Atomstrahl und Elektronenstrahl gebildeten Ionen werden vom Strahlungsdruck der Laserstrahlung gekühlt. Die Resonanzfluoreszenz wird mit großer Raumwinkel-effizienz durch die Polkappe beobachtet und von der Nachweisoptik auf den Photomultiplier abgebildet.

unterhalb der Sättigung die Korrelationsfunktion im Grenzwert eine intensitätsunabhängige Form bekommt (vgl. Kap.2.3).

- Die Signalrate, also die Anzahl der Photonenkoinzidenzen pro Nanosekunde, steigt quadratisch mit der Fluoreszenzrate und somit unterhalb der Sättigungsschwelle auch quadratisch mit der Intensität der Anregung. Bei der nichtlinearen Frequenzverdopplung wächst die Leistung im Ultravioleten ebenfalls quadratisch mit der Leistung der Grundwelle, so daß also das Signal mit der vierten Potenz der Lichtleistung im Sichtbaren wächst.

Mit einem elektronisch auf einen Referenzresonator stabilisierten Farbstoff-

Elektroden	
Radius der Ringelektrode	$r_0 = 2.5mm$
Abstand der Polkappen	$2z_0 = 3.54mm$
Speicherfeld	
Gleichspannungsanteil	$U_0 = +10V$
Wechselspannungsamplitude	$V_0 = 570V$ (aus 5W)
Speicherfrequenz	$\omega_{rf} = 2\pi \times 11MHz$
Potentialtiefe dabei	
radial	$D_r = 15.4eV$
axial	$D_z = 16.8eV$
Elektronenquelle	
Filamentheizstrom	$I_H = 1.5A$
Filamentspannung	$U_A = -100V$
Strom auf Netz	$I_N = 2\mu A$
Atomstrahlrofen	
Heizstrom	$I_H = 600 - 750mA$
Heizleistung	$P_H \approx 6W$
Vakuum	
Basisdruck	$p_B = 5 \times 10^{-11}mb$
Puffergasdruck	$p_{He} = 1 \times 10^{-4}mb$
Detektionssystem	
Quanteneffizienz	$\eta = 5 \times 10^{-4}$

Tab.1 Wichtige Kenngrößen und Betriebsparameter der Ionenfallenapparatur

Ringlaser^[11] konnte bis zu 1.5W Ausgangsleistung im Einmodenbetrieb bei 560nm erzeugt werden. Dazu wurde auf 6°C gekühlter, in Äthylenglycol gelöster, Rhodamin 110 Farbstoff mit 11W gepumpt^[12]. Laut Firmenangabe⁴⁹ hat dieser Farbstoff eine Lebensdauer von 100 Wattstunden absorbiertener Pumpenergie, was in der Laborpraxis leider bestätigt werden mußte und einen etwa wöchentlichen Farbstoffwechsel erforderlich machte.

Zur effektiven Frequenzverdopplung auf 280nm bietet sich deuteriertes Ammoniumdihydrogenphosphat (AD*P) an, da dieser Kristall bei einer Temperatur von 118°C für die Frequenzverdopplung auf 280nm phasenangepaßt ist, wobei sowohl Grundwelle als auch Harmonische senkrecht zur optischen Achse verlaufen (90°-

[11] Fa.Coherent, Modell CR699-21

[12] Fa.Coherent, Innova20 Argon-Ionen Laser

Phasenanpassung)⁵⁰. Mit einem 30mm langem Kristall konnte bei optimaler Fokussierung eine UV-Konversionseffizienz von $\eta_{AD^*P} = 290 \mu W/W^2$ erzielt werden. Leider erwies sich die hohe Konversionseffizienz als wenig brauchbar für das Experiment, da das Zusammenwirken der hohen Phasenanpassungstemperatur^[13] mit der erzeugten UV-Leistung zur Zerstörung der Kristalloberfläche führte. Deshalb mußte bei hohen Farbstofflaserleistungen (über 1W) der Kristall nach wenigen Minuten verschoben werden, was im allgemeinen zu einem Versatz des Laserfokus in der Ionenfalle führte. Da die Justierung des Fokus auf das punktförmig lokalisierte Ion sehr kritisch ist, wurde auf die Verwendung von AD*P verzichtet und stattdessen ein Kaliumdihydrogenphosphat (KDP)-Kristall zur Frequenzverdopplung verwendet. Dieser Kristall wird bei Zimmertemperatur phasengangepaßt, indem die Grundwelle unter einem Winkel von 67° zur optischen Achse eingestrahlt wird, da dann die orthogonal polarisierte Harmonische den gleichen Brechungsindex erfährt⁵². Aufgrund der Doppelbrechung des Kristalls sind Poyntingvektor und Wellenvektor der Harmonischen nicht parallel, so daß Grundwelle und Harmonische nun nicht mehr kollinear verlaufen⁵³. Dadurch wird die Konversionseffizienz wesentlich kleiner.

Die mit einem 25mm langem KDP-Kristall bei optimaler Fokussierung gemessene Effizienz von $\eta_{KDP} = 7 \mu W/W^2$ ^[14] war zu klein, um den schnellen Mg^{+} -Dipolübergang auch nur annähernd zu sättigen. Der Fokus in der Ionenfalle durfte nicht zu klein gewählt werden, da die Schwankungen des Laserfokus am Ort der Ionenfalle in der Größenordnung von 10 μm lagen. (Dies wurde mit einer Quadrantendiode gemessen und läßt sich vermutlich auf die Verwendung getrennter Tischplatten für den optischen Aufbau zurückführen.) Durch die Verwendung eines externen Ringresonators zur Leistungserhöhung der Fundamentalwelle konnte die geringe Konversionseffizienz des KDP-Kristalls mehr als kompensiert werden. Im Prinzip könnte die Frequenzverdopplung auch im Laserresonator selbst erfolgen, jedoch wurde hierauf verzichtet, da die Stabilität des Ringlasers sehr empfindlich auf doppelbrechende Elemente im Strahlengang reagiert. Es erwies sich auch als wenig problematisch, den externen Ringresonator mit einer Hänsch-Couillaud-Stabilisierungsanordnung⁵⁴ in Resonanz mit der Laserstrahlung zu halten.

Dabei wird ausgenutzt, daß aufgrund zahlreicher Brewsterflächen für in der Resonatorebene polarisiertes π -Licht die Güte des Resonators sehr hoch, für σ -Licht orthogonaler Polarisation dagegen sehr klein ist. Das σ -Licht wird daher am Einkoppelspiegel reflektiert, während π -Licht abhängig von der Frequenzverstimmung transmittiert oder mit einem vom Vorzeichen der Verstimmung abhängigen Phasengewinn- bzw. Verlust reflektiert wird. Licht mit etwas von der σ -Richtung abweichender Polarisation ist daher verstimmungsabhängig rechts- bzw. linkselliptisch polarisiert und kann einem Analysator für zirkuläre Polarisation zur

[13] Die Zerstörungsgrenze des Kristalls liegt bei ca. 120°C⁵¹.

[14] Die angegebenen Konversionseffizienzen schließen die Reflektionsverluste am Brewsterfenster für die Grundwelle ein

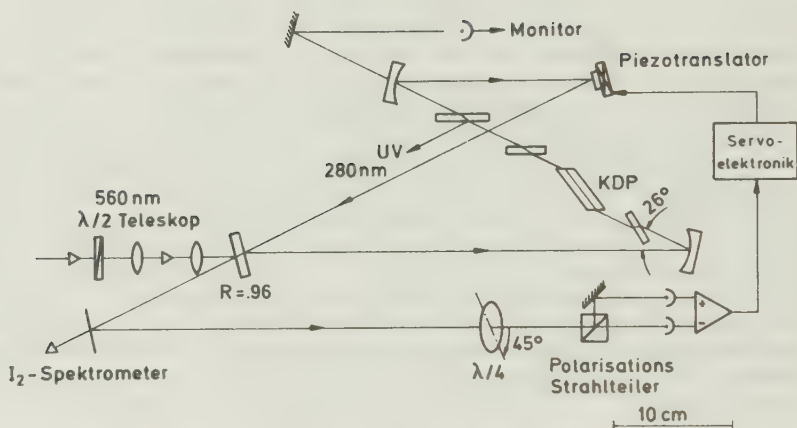


Bild 5: Schemazeichnung des Resonators für die Frequenzverdopplung

Gewinnung eines Regelsignals zugeführt werden. Dieses Regelsignal wird in einem Servoverstärker mit einem $1/f$ Frequenzgang verstärkt und über einen Hochspannungsverstärker mit Operationsverstärkercharakteristik^[15] einem Piezotranslator zugeführt, der die Resonatorlänge nachregelt. Im Fokus des Resonators befindet sich der hygroskopische KDP-Kristall in einem mit einem Trockenmittel versehenen Gehäuse. In Resonanz wurde eine zwanzigmal höhere Lichtleistung im Resonator als vor dem Einkoppelspiegel gemessen und damit eine 400-fache UV-Ausbeute erzielt. Das UV-Licht wird mit einem dichroitischen Strahlteiler absepariert, der für die Grundwelle unter dem Brewsterwinkel steht und bei 280nm hochreflektierend ist.

Das UV-Licht wird zur räumlichen Filterung auf eine Lochblende fokussiert und von dort mittels einer in allen drei Raumrichtungen verfahrbaren Linse in die Ionenfalle abgebildet. Der besonders kritische Überlapp des Laserfokus mit dem Ion wird durch Verfahren der Linse mit Hilfe zweier motorgesteuerter Präzisionsmikrometerschrauben justiert^[16]. Um nach einem Strahlversatz (z.B. nach Neujustierung des Farbstofflasers) den Laserfokus korrigieren zu können, wurde mit einem kinematisch gelagertem und dadurch reproduzierbar einfügbaren Spiegel⁵⁵ ein Bild des Laserfokus auf einer Quadrantendiode entworfen, deren Mit-

[15] Fa. TREK mod. 601-43

[16] Encoder Mike der Fa. Oriel

telpunkt genau dem Zentrum der Ionenfalle entsprach. Diese Einstellung erwies sich als reproduzierbar genug, um ein Ion zu kühlen und nachzuweisen. Danach konnte dann die endgültige Optimierung des Fokus durch Maximierung des Fluoreszenzsignals erfolgen.

Eine Bestimmung der Intensität im Zentrum des Laserfokus ist problematisch, da hierfür sowohl die Laserleistung als auch die Geometrie des Fokus bekannt sein müssen, beide jedoch nur relativ ungenau bestimmt werden können. Die Form der Strahltaile wurde mit einer präzise verfahrenbaren Rasierklinge auf etwa $10\mu\text{m}$ genau bestimmt. Wegen der unterschiedlichen Ausbreitungsrichtungen von Grundwelle und Harmonischer im KDP-Kristall erhält man ein elliptisches Bild, dessen vertikale Ausdehnung 2.5mal größer ist als die horizontale. In horizontaler Richtung wird der Intensitätsverlauf durch eine Gaußfunktion beschrieben, während die Intensität in vertikaler Richtung über einen größeren Bereich konstant ist. Diese Geometrie wurde bei der Bestimmung einer effektiven Fokusfläche A zugrundegelegt, mit der die Intensität I im Zentrum der Ionenfalle aus der Laserleistung P gemäß $I=P/A$ berechnet werden kann.

Die Leistung P des durch die Ionenfalle transmittierten Lichts wurde mit einer geeichten Photodiode gemessen^[17]. Sie lag maximal bei etwa $500\mu\text{W}$. Die Intensität konnte in wohldefinierter Weise mit geeichten Quarzgraufiltern abgeschwächt werden. Danach mußte im allgemeinen eine durch Keilwinkel verursachte Strahlablenkung mit Hilfe der Quadrantendiode korrigiert werden. Ein Teil der transmittierten Strahlung wurde auf einen Referenz-Photomultiplier abgebildet, dessen zur Leistung proportionale Ausgangspulsrate über den IEEE488-Bus in den CBM 8296 Minicomputer eingelesen werden konnte. Bei den Messungen der Fluoreszenzspektren wurde das Signal auf die Referenzzählrate normiert. Damit wurden im Bereich linearer Abhängigkeit der Fluoreszenz von der Intensität UV-Leistungsschwankungen kompensiert.

^[17]Fa.Laser Components, OSD 50-1

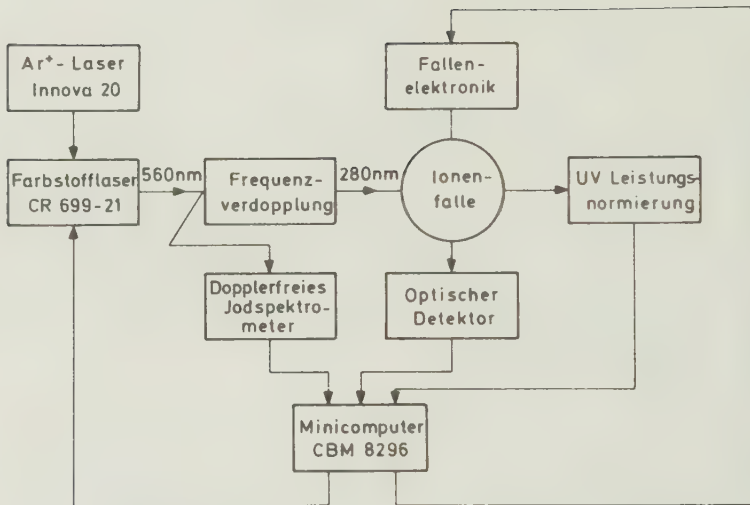


Bild 6: Versuchsanordnung für die Spektroskopie an gespeicherten Ionen. Wegen der großen Empfindlichkeit des Experiments gegenüber Dejustierung ist der Versuchsablauf weitgehend automatisiert bzw. fernsteuerbar.

5. Spektroskopie an gespeicherten Ionen

5.1. SPEKTROSKOPIE AN MAGNESIUM-IONEN-WOLKEN

Bei der ersten Suche nach einem Fluoreszenzsignal gespeicherter Ionen ist es enorm hilfreich, vor dem Laden etwa 10^{-4} mb Heliumgas in die Apparatur einzulassen. Dadurch wird nicht nur die Dopplerbreite des Anregungsspektrums reduziert, sondern auch die Ionendichte erhöht sowie die Ionenspeicherzeit dramatisch verlängert. Bei einem Basisdruck von 1×10^{-10} mb ließ sich eine heliumgasgeköhlte Mg^+ -Wolke über Nacht speichern. Eine Messung der Resonanzfluoreszenz ergab nach 16 Stunden Speicherzeit noch 30% des Signals. Das Helium wird im Experiment vorvakuumseitig eingelassen. Es muß dann gegen die Pumprichtung der Turbomolekularpumpe in den UHV-Rezipienten strömen und wird dabei effektiv von Verschmutzungen durch schwerere Gase gereinigt, für die die Kompression durch die Turbomolekularpumpe sehr hoch ist⁵⁶.

Zum Laden muß der Magnesiumofen trotz seiner Miniaturisierung bei 650 mA Heizstrom etwa 10 Minuten warmlaufen. Danach wird der Wolframglühfaden mit 1.5 A geheizt und die emittierten Elektronen (etwa $100 \mu\text{A}$) werden vom Wehneltzylinder fokussiert und mit -100 V auf die auf Massepotential liegende Anode beschleunigt. Bei richtig eingestellter Spannung am Wehneltzylinder werden davon noch etwa $2 \mu\text{A}$ vom Molybdännetz der ersten Polkappe aufgefangen, so daß auch im Kreuzungsgebiet mit dem Atomstrahl einige μA fließen sollten. Während der Heizung der Elektronenquelle wird der Beobachtungskanal mit einer elektromagnetischen Irisblende verschlossen, um den Photomultiplier nicht durch den hell leuchtenden Glühfaden zu zerstören. Die Laserfrequenz muß bei der Suche nach einer großen Ionenwolke wegen der Dopplerverbreiterung nur auf etwa 1 GHz genau einstellbar sein. Sie läßt sich leicht mit Hilfe eines Michelson-Interferometers variabler Armlänge⁵⁷ auf einige 10 GHz genau messen. Eine reproduzierbare Frequenzfestsetzung auf etwa 100 MHz ist durch Vergleich des mittels einer Jodzelle gemessenen dopplerverbreiterten Absorptionsspektrums mit dem Jodatlas möglich⁵⁸⁻⁵⁹. Auf das Michelsoninterferometer wurde später verzichtet, da die wellenlängenabhängige Phasen Anpassung des AD*P-Kristalls als Frequenzdiskriminator verwendet werden konnte.

Eines der ersten so gewonnenen Mg^+ -Spektren ist zusammen mit einem gleichzeitig aufgezeichneten Jodspektrum in Bild 7 gezeigt. Die Dopplerbreite von $2\pi \times 4.4 \text{ GHz}$ entspricht einer Temperatur von 800 K. Bei der Aufzeichnung dieses Spektrums wurde die Fluoreszenz noch mit einer einfachen Linse abgebildet. Nach dem Ersatz durch das dreilinsige Zeiss-System konnte ein Signal/Untergrund Verhältnis von besser als 10^3 erzielt werden. In Bild 8 ist das deutlich verbesserte Signal/Untergrund-Verhältnis und der Einfluß der Puffergaskühlung auf die Signalthöhe zu sehen: nach dem Abpumpen des Heliums sinkt das Signal auf etwa 0.2%!

Das Helium-Puffergas kann zwar die Säkularbewegung kühlen, nicht aber die Energie der Mikrobewegung beeinflussen. Letztere ist ja durch die Stärke des

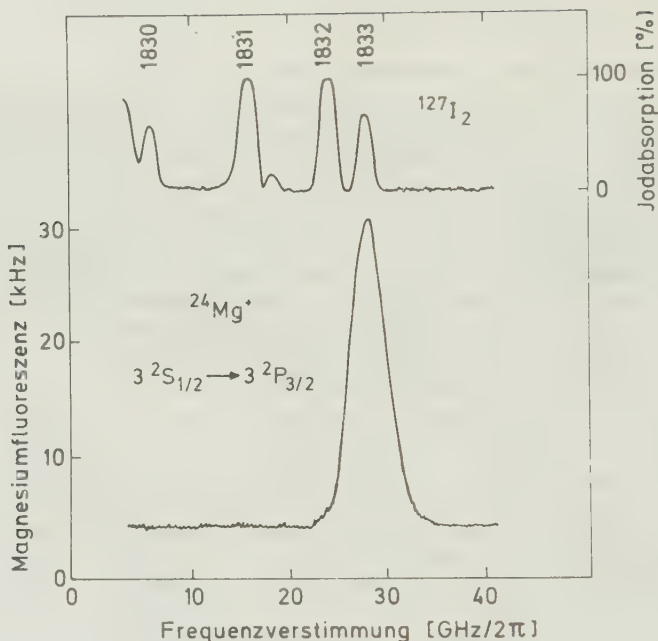


Bild 7 : Anregungsspektrum von etwa 10^5 Ionen mit überlagertem Jodspektrum. Die Zahlen über dem Jodspektrum verweisen auf tabellierte Linien im Jodatlas⁵⁸.

Pseudopotentials vorgegeben und wächst daher quadratisch mit dem Abstand zum Fallenzentrum. Diese Abhängigkeit der kinetischen Bewegung vom Ort der Ionen in der Falle kann im Anregungsspektrum gesehen werden: Bild 9 zeigt ein Spektrum, das mit einem um $300\mu\text{m}$ seitlich versetzten Laserfokus aufgezeichnet wurde. Deutlich ist die Verbreiterung durch die Mikrooszillation zu sehen. Die Einsattelung in der Mitte ist typisch für ein frequenzmoduliertes Spektrum⁴⁵. Eine vollständige Elimination der Mikrobewegung ist im Prinzip nur mit einem einzelnen Ion möglich, das ja im Gebiet verschwindenden Speicherfeldes lokalisiert werden kann.

Es ist sehr schwierig, im nachhinein Ionen in definierter Weise aus der Falle zu entfernen, nachdem sie erst einmal gespeichert sind. Zweckmäßigerweise werden beim Ladevorgang Atomstrahlstärke und Ionisationsstrom- sowie Zeit so gewählt, daß von vorneherein nur wenige Ionen geladen werden.

Ein geeignetes, aber aufwendiges Verfahren wurde von Wineland et al.⁶⁰ demonstriert: Die

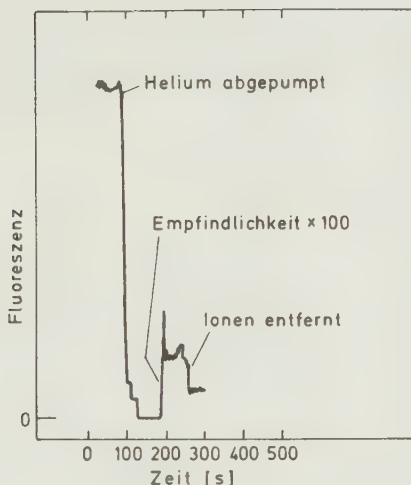


Bild 8: Einfluß der Helium-Puffergaskühlung auf die Signalhöhe: Erst mit der verbesserten Nachweisoptik war es möglich, die ohne Kühlung sehr schwache Resonanzfluoreszenz über dem Streulicht nachzuweisen.

Anzahl von gespeicherten $^{24}\text{Mg}^+$ -Ionen wurde reduziert durch resonanten Ladungsaustausch mit neutralem ^{25}Mg , dessen Dampfdruck über die Temperatur eines ^{25}Mg -Ofens regulierbar war. Die neu entstandenen $^{25}\text{Mg}^+$ -Ionen wurden durch elektronische Anregung ihrer Eigenschwingung selektiv aus der Falle entfernt.

Der einfachere Weg schien aber die Kontrolle der Ionenzahl beim Ladevorgang zu sein.

5.2. DER QUANTITATIVE IONENNACHWEIS

Eine Bestimmung der Zahl der gespeicherten Ionen aus den Fluoreszenzmessungen ist aus mehreren Gründen problematisch:

1. Die Quanteneffizienz des Nachweissystems war nur ungenau bekannt.
2. Die Streurate eines einzelnen ungekühlten Ions kann nur mit großer Unsicherheit berechnet werden, da wegen der großen Dopplerverbreiterung eine Sättigung der Anregung nicht möglich war und somit der schwer meßbare Absolutwert der Laserintensität die Streurrate bestimmt.
3. Der Laserstrahl schneidet nur einen dünnen Zylinder aus der Ionenwolke aus, so daß die Fluoreszenzrate einer großen Ionenwolke nur ein Maß für die Ionendichte im Laserfokus ist und zusätzliche Messungen oder Annahmen zur Festlegung der Geometrie der Wolke vonnöten sind.

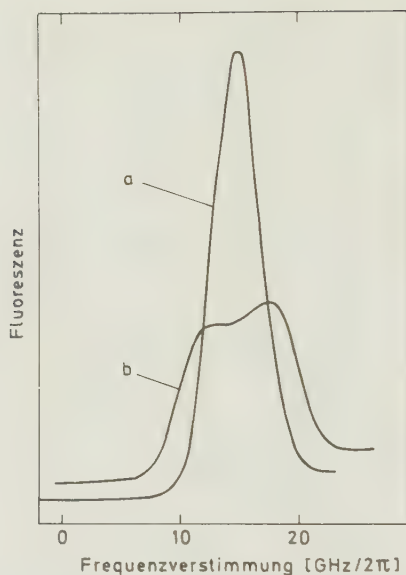


Bild 9: Anregungsspektrum einer Magnesiumionenwolke für

(a) zentral justierten und

(b) um 300μm seitlich versetzten Laserfokus.

Die größere Breite des Spektrums (b) wird von der mit steigendem Abstand zum Zentrum zunehmenden Mikrobewegung verursacht. Die Asymmetrie resultiert aus einer Zunahme des Streulichtuntergrunds im Verlauf der Messung.

Es schien daher sinnvoll, von einem quantitativen optischen Nachweis abzusehen und sich einer aus der Frühzeit der Ionenfallenexperimente bekannten Methode zu bedienen: des elektronischen Nachweises^{61–63}. Ganz analog zur Kernspinresonanzmethode⁶⁴ wird die Ionenfalle als kapazitives Element C in einen angeregten Parallelschwingkreis integriert (Bild 10), dessen Resonanzfrequenz ω_0 in der Nähe der axialen Resonanzfrequenz ω_z liegt. Über den Gleichspannungsanteil ϕ_0^{DC} am Speicherfeld kann die Steilheit des Pseudopotentials variiert und die Ionenwolke in Resonanz mit dem Schwingkreis gebracht werden (vgl. Kap.3.1.). Die Auslenkung des Schwerpunkts der Ionenwolke gehorcht der Bewegungsgleichung des angeregten harmonischen Oszillators:

$$\frac{d}{dt^2}z + \gamma \frac{d}{dt}z + \omega_z^2 z = \frac{eU \cos \omega_0 t}{mz_0} \quad (5.1)$$

Dabei ist e die Ionenladung, m die Ionenmasse und γ beschreibt die viskose

Dämpfung durch das Puffergas. Die Anregungsenergie des Oszillators wird dem Schwingkreis entzogen und an das kühlende Puffergas abgeführt. Dadurch wird die Güte des Resonanzkreises und damit auch der Spannungsabfall U an dessen Resonanzwiderstand kleiner.

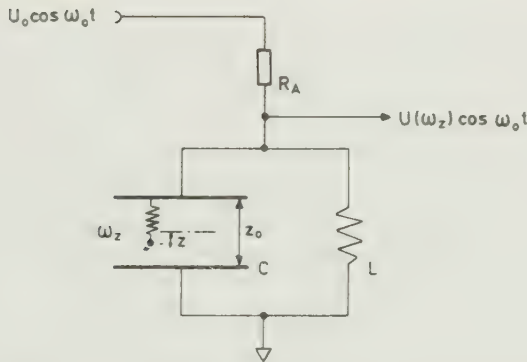


Bild 10: Prinzip des elektronischen Ionennachweises: Die harmonisch gebundene Ionenwolke induziert oszillierende Bildladungen auf den durch die Elektroden der Ionenfalle realisierten Kondensatorplatten. Hierdurch wird eine Änderung des Spannungsabfalls am LC-Kreis bewirkt, aus dem die Zahl der gespeicherten Ionen ermittelt werden kann.

Zur quantitativen Rechnung ersetzt man in Gl. (5.1) die Auslenkung z durch die von der Ionenwolke (N Ionen) auf den Kondensatorplatten induzierte Bildladung q . Für den unendlich ausgedehnten Plattenkondensator gilt⁶⁵:

$$\frac{d}{dt}q = \frac{Ne}{z_0} \frac{d}{dt}z \quad (5.2)$$

und damit nach Einsetzen in Gl. (5.1)

$$L_i \frac{d}{dt^2} q + R_i \frac{d}{dt} q + \frac{1}{C_i} q = U \cos \omega_0 t$$

mit

$$L_i = \frac{m}{N} \left(\frac{z_0}{e} \right)^2 \quad (5.3)$$

$$C_i = \frac{1}{\omega_z^2 L_i}$$

$$R_i = \gamma L_i$$

Gl. (5.3) ist die aus der Schaltungstechnik bekannte Differentialgleichung für einen Serienresonanzkreis. Die Dämpfung des LC-Parallel-Kreises entspricht also einem Kurzschluß durch einen R_i, L_i, C_i -Serienresonanzkreis, dessen Schaltungselemente Funktionen der Ionenzahl N sind. Bei kleiner Anregung ist die Schwingungsamplitude der Ionenwolke kleiner als der Fallenradius, so daß bei der Anregung keine Ionen verloren gehen und mit Hilfe der gängigen Schaltungstheorie die Meßgrößen $\Delta U/U$ und $\Delta \omega_z$ aus Bild 12 in Relation zur Ionenzahl gesetzt werden können. Es zeigt sich, daß das Produkt aus relativer Spannungsänderung am Schwingkreis und Resonanzbreite direkt proportional zur Ionenzahl ist⁶³:

$$N = \frac{\Delta U}{U} \Delta \omega_z \left(\frac{1}{R_A} + \frac{1}{R_{res}} \right) \frac{m z_0^2}{e^2} \alpha \quad (5.4)$$

Der Faktor $\alpha = 4.8$ berücksichtigt die Abweichung der Ionenfalle von der Geometrie des Plattenkondensators in Bild 10⁶³.

Die Messung der Ionenzahl nach Gl. (5.4) ist schwierig, weil das sehr kleine Signal ($\Delta U \approx 50 \mu V$ für eine große Wolke) vom starken Speicherfeld (570V) überlagert ist, so daß effektive Filterung notwendig ist. Des weiteren sollte das Signal möglichst hochohmig am Schwingkreis abgegriffen werden, da nach Gl. (5.4) die Spannungsänderung ΔU durch eine gegebene Ionenzahl umso größer ist, je größer der Ankoppelwiderstand R_A und der Resonanzwiderstand R_{res} gewählt werden. Es mußte eine eigene Nachweiselektronik entwickelt werden (Bild 11), weil kommerzielle Hochfrequenzelektronik mit niederohmiger 50Ω-Ankopplung standardisiert ist. Die Messungen zeigten das zunächst überraschende Resultat von drei etwa gleichstarken Resonanzen (Bild 12), denn im natürlich vorkommenden Magnesium sind die Isotope ^{24}Mg , ^{25}Mg und ^{26}Mg im Verhältnis 8/1/1 sehr ungleich enthalten. Die etwa gleichstarke Dämpfung jeder Isotopenresonanz läßt sich aber verstehen, wenn man für die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den geladenen Ionen eine viel kürzere Zeitkonstante annimmt als für die Kühlung durch das neutrale Puffergas: Eine Anregung eines Isotops wird dann schnell auf die gesamte Ionenwolke übertragen, die als ganzes langsam vom Puffergas gekühlt wird.

Die Größe der gespeicherten Ionenwolke läßt sich im Ladeprozeß bequem über Zeitdauer T_L und Stromstärke I_L des ionisierenden Elektronenstrahls variieren:

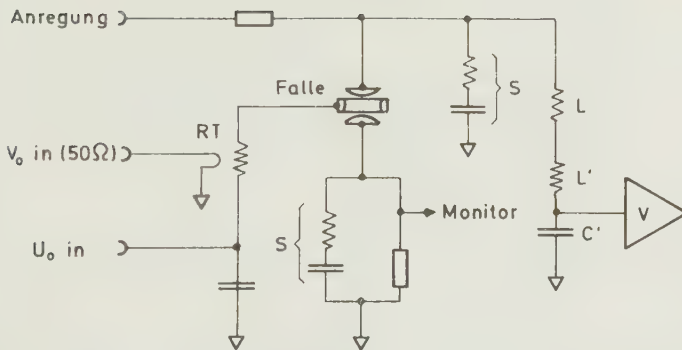


Bild 11: Speicherfeld- und Nachweiselektronik

Im Resonanztransformator RT wird das niederohmige Ausgangssignal V_0 eines $2\pi \times 11\text{MHz}$ -Sinusgenerators auf Hochspannung transformiert. Die Saugkreise S leiten Störspannung bei $2\pi \times 11\text{MHz}$ ab. Die Kapazität der Ionenfalle bildet zusammen mit der Spule L einen Parallelresonanzkreis, in dem das Signal der mit der Säkularfrequenz ($2\pi \times 1.46\text{MHz}$) schwingenden Ionenwolke verstärkt wird. Es wird im $L'C'$ -Serienresonanzkreis gefiltert und anschließend mit einem Operationsverstärker hochohmig verstärkt. Der von der Polkappe aufgefangene Teil des Elektronenstrahls kann am Monitor-Ausgang gemessen werden.

solange die Zahl der geladenen Ionen klein im Vergleich zur Maximalzahl ist, gilt $N = kT_L I_L$ mit einer Proportionalitätskonstanten $k = 1.5 \times 10^3$ Ionen/ (μAs) (Bild 13). Hierbei wurde die schwer meßbare tatsächliche Ionisationsstromstärke durch den ihr proportionalen Strom I_N auf das Netz der durchstrahlten Polkappe ersetzt.

Zum Laden einzelner Ionen wurde dann folgendes Verfahren angewandt: Die Stromstärke wurde auf den kleinsten noch gut einstellbaren Wert $I_N = 0.2\mu\text{A}$ reduziert und die Pulsdauer der Anodenspannung U_A mit einem Transistorschalter auf 10-40ms begrenzt. Mit dieser Einstellung konnte zum ersten Mal ein einzelnes Ion geladen werden!

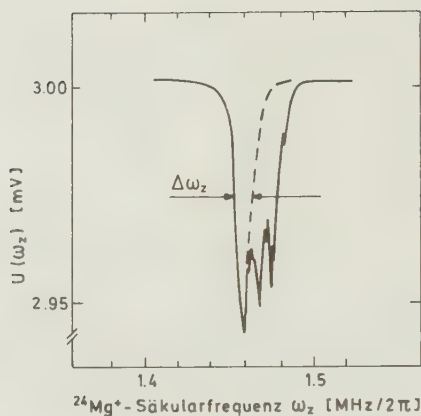


Bild 12: Abhängigkeit der Dämpfung des LC-Kreises durch eine große Ionenwolke von der Säkularfrequenz

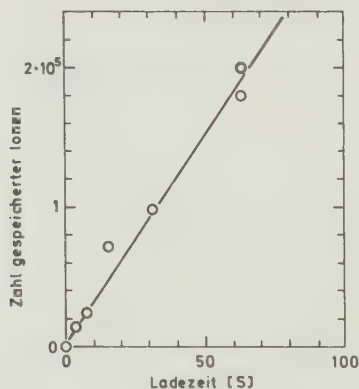


Bild 13: Größe der Ionenwolke als Funktion der Ladezeit. Die Meßwerte beziehen sich auf einen Elektronenstrahl von $I_N = 2\mu\text{A}$ und einen Ofenheizstrom $I_H = 650\text{mA}$.

5.3. SPEKTROSKOPIE AN EINZELNEN IONEN

Ein einzelnes Ion ist nach Kühlung in der Ionenfalle nahezu punktförmig lokalisiert und spektral auf die halbe natürliche Linienbreite eingengt (die kurzzeitige

Parameter beim elektronischen Nachweis

Wechselspannungsamplitude des Speicherfeldes	$U_0 = 570V$
Gleichspannungsamplitude des Speicherfeldes	$V_0 \approx 8V$
Ankoppelwiderstand	$R_A = 1M\Omega$
Resonanzwiderstand des LC-Kreises	$R_{res} = 138k\Omega$
	(ohne Ionen)
Resonanzfrequenz des LC-Kreises	$\omega_0 = 2\pi \times 1.46MHz$
Amplitude der Anregung am LC-Kreis	$U = 3mV$
	(ohne Ionen)

Tab.2 Übersicht über die beim elektronischen Nachweis wichtigen Parameter

Seite des Spektrums ist wegen der Strahlungsdruckheizung nicht beobachtbar), so daß es zunächst sehr schwer nachzuweisen ist. Nachdem festgestellt wurde, daß das Experiment gegenüber Erschütterungen im Labor äußerst empfindlich ist, wurde der experimentelle Ablauf weitgehend automatisiert und von einem festen Platz aus ferngesteuert (vgl. Bild 6). Da die Einstellung der Laserfrequenz mit Hilfe der dopplerverbreiterten Jodabsorptionslinien für die Kühlung einzelner Ionen nicht genau genug ist, wurde eine Anordnung zur dopplerfreien Jodabsorption aufgebaut. Hiermit ließ sich ohne größere Anstrengung durch Modulation des Pumpstrahls und Nachweis der differentiellen Absorption zweier Probestrahlen mit Hilfe der Lock-In Technik eine auf 10MHz reproduzierbare Frequenzeinstellung erreichen.

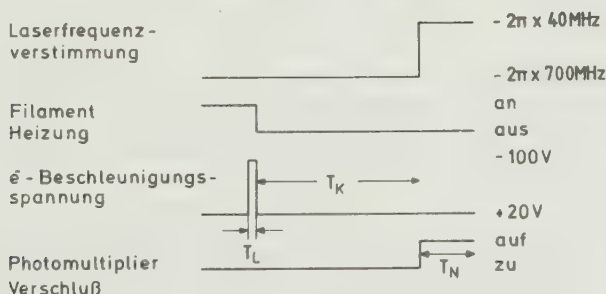


Bild 14: Computergesteuerter Lade- und Nachweiszyklus

Nach der Ladezeit T_L (typ. 20ms) bleibt die Laserfrequenz noch während der Kühlzeit T_K (typ. 1min.) stark rot verstimmt und garantiert dadurch eine hohe Kühlleistung. Während der Nachweiszeit T_N (typ. 1-3min.) kann der Zyklus jederzeit unterbrochen werden.

Die Position des Laserfokus ist gerade bei der verwendeten großen Ionenfalle sehr kritisch. Zur Einstellung wurde eine große Ionenwolke geladen und durch Verschieben der Linse der Laserstrahl an einen Ort maximaler Fluoreszenz justiert. Danach wurde die Ionenfalle durch Abschalten des Speicherfeldes geleert und der automatische Ladezyklus gestartet (Bild 14). Zeichnet man dabei die Fluoreszenzrate gegen die Zeit auf, so werden über einem Streulichuntergrund diskrete Stufen sichtbar, deren Höhe bei sättigender Anregung direkt proportional zur Zahl der gespeicherten Ionen (Bild 15) ist.

Nachdem die gewünschte Zahl von Ionen geladen ist, wird der Ladezyklus unterbrochen und es können Spektren aufgezeichnet werden. Die Laserfrequenz wird dabei vom CBM8296 Minicomputer über einen Digital-Analog-Wandler ferngesteuert, indem dessen Ausgangsspannung in die Buchse zur externen Steuerung des Farbstofflasers eingespeist wird. Sobald die Resonanzfrequenz überschritten ist, springt die Fluoreszenz auf das Streulichniveau zurück und die Laserfrequenz wird um $2\pi \times 40\text{MHz}$ heruntergeschaltet, um das Ion nicht durch Heizung zu verlieren (Bild 16).

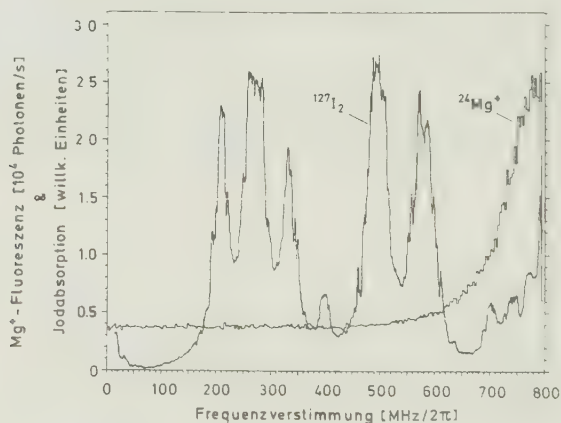


Bild 16: Anregungsspektrum eines einzelnen Magnesium-Ions mit überlagertem dopplerfreien Absorptionssignal der Jodlinie 1833 (vgl. Bild 7). Auch bei dieser Messung wurde wegen des Strahlteilers weniger als 50% des Signals gezählt.

Noch nicht vollständig abgepumptes Heliumpuffergas wirkt sich sehr störend auf die Lokalisierung einzelner kühler Magnesium-Ionen aus: noch einige Stunden nach Sperrung der Heliumzufuhr konnte beobachtet werden, daß das Fluoreszenzsignal als Folge von Stößen für einige Sekunden auf das Streulichniveau zurück

Lade- und Kühlzyklus



Bild 15: Zählrate am Photomultiplier während des automatischen Lade- und Nachweiszyklus

Während des Lade- und Kühlvorgangs ist der Detektorkanal verschlossen, so daß nur die Dunkelpulsrate D gezählt wird. Während der Nachweisperiode sind über dem Streulichtuntergrund S äquidistante Stufen erkennbar, deren Höhe die Zahl der gespeicherten Ionen anzeigt (vgl. rechte Skala). Nach Ende der Nachweisperiode wird die Ionenfalle durch Abschalten des Speicherfeldes geleert.

Der Atomstrahl ofen bleibt während der gesamten Messung angeschaltet, so daß auch bei abgeschalteter Elektronenquelle durch Ladungsaustausch die Zahl der gespeicherten Magnesium-Ionen variieren kann. Ist die gewünschte Zahl von Ionen geladen, wird der Ladezyklus unterbrochen und der Atomstrahl ofen abgestellt. Die Signalhöhe bleibt dann während der Speicherzeit (etwa 10 min.) stabil. Bei dieser Messung war bereits der für die Korrelationsmessung benötigte Strahlteiler eingesetzt (vgl. Kap. 6.), so daß die Gesamtzählrate mehr als doppelt so hoch ist, wie hier angezeigt.

sprang. Zu dieser Beobachtung kann man sich folgende Modellvorstellung machen: Während das Ion mit großer Amplitude durch den Laserstrahl schwingt, ist die Streurrate sehr gering und demzufolge die Kühlleistung klein. Ist aber nach einiger Zeit durch die langsame Kühlung die Oszillationsamplitude erst einmal klein genug, so daß die Bewegung des Ions ganz auf den Laserstrahl beschränkt bleibt,

verläuft die weitere Kühlung sehr schnell und die Fluoreszenz steigt sprunghaft auf den alten Wert an (Bild 17). Diese Messung war die erste Evidenz dafür, daß nur ein einzelnes Ion gespeichert ist und daß dessen Temperatur wesentlich kleiner ist als die Heliumtemperatur von etwa 300K.

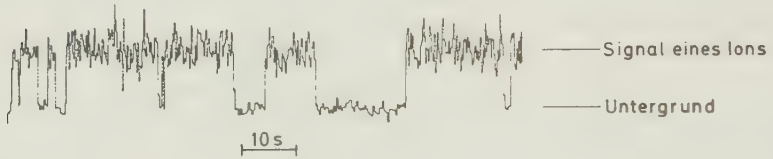


Bild 17: Durch Stöße mit noch nicht vollständig abgepumpten Heliumgas ($p_{He} = 7 \times 10^{-9} mb$) wird das gekühlte Ion kurzzeitig aus dem Laserfokus herausgestoßen. Die Laserfrequenzverstimung betrug $2\pi \times 40 MHz$.

Ein genauerer Anhalt für die Temperatur des Ions ergibt sich aus der spektralen Bandbreite. Es zeigte sich, daß auch bei kleinen Laserleistungen die Bandbreite stets erheblich größer war als aufgrund der theoretischen Kühlgrenze erwartet. Die Verbreiterung $\Delta\omega$ war um so stärker, je flacher der Potentialtopf für das gespeicherte Ion eingestellt wurde (Bild 18). Die Abhängigkeit ist näherungsweise beschreibbar durch

$$\Delta\omega = 2\pi \times 200 MHz \cdot \left(\frac{100V}{V_0} \right) \quad (5.5)$$

V_0 Wechsellspannungsamplitude des Speicherfeldes

Eine derartige Abhängigkeit der spektralen Verbreiterung ist zu erwarten, wenn das Ion durch eine konstante Kraft aus dem Zentrum des Potentialsattels herausgedrückt und dort unter dem Einfluß des Speicherfeldes zu Schwingungen angeregt wird. Eine solche Kraft wird durch den Strahlungsdruck F_L des unidirektionalen Laserstrahls ausgeübt. Bei typischen experimentellen Bedingungen ist der Magnesiumübergang schwach gesättigt und damit die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung des angeregten Zustands etwa $\frac{1}{4}$. Für den Strahlungsdruck erhält man damit:

$$\begin{aligned} \vec{F}_L &= \frac{\hbar\omega_L}{c} \Gamma \frac{1}{4} \vec{e}_L \\ \frac{\hbar\omega_L}{c} & \quad \text{Impulsübertrag eines Laserphotons} \\ \vec{e}_L & \quad \text{Einheitsvektor in Strahlrichtung} \end{aligned} \quad (5.6)$$

Die Auslenkung des Ions erfolgt soweit, bis der Strahlungsdruck $\vec{F}_L$ durch das Pseudopotential gerade kompensiert wird:

$$\vec{F}_L = \vec{\nabla} \Psi(r, z) \quad (5.7)$$

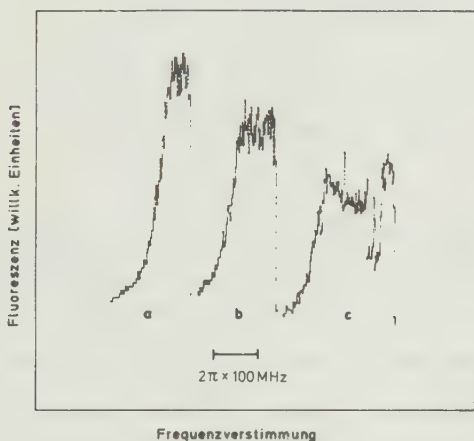


Bild 18: Abhängigkeit des Anregungsspektrums eines einzelnen Mg^+ -Ions von der Amplitude des Speicherfeldes

(a) $V_0 = 429V$

(b) $V_0 = 286V$

(c) $V_0 = 143V$ (die Fluktuationen in diesem Spektrum sind vermutlich auf kurzzeitige Aufheizung des Ions aufgrund einer Restgaskollision zurückzuführen)

Unter Verwendung von Gl. (3.5) für das Pseudopotential läßt sich die Auslenkung $\vec{x} = (r, z)$ des Ions und damit dann aus Gl. (3.1–3.2) die Feldstärke $\vec{E}(\vec{x}) = \vec{E}_0 \cos \omega_{rf} t$ berechnen. Unter dem Einfluß dieses Feldes oszilliert das Ion mit einer Amplitude

$$\vec{a} = \frac{e\vec{E}_0}{m\omega_{rf}^2} \quad (5.8)$$

Die Projektion dieser Bewegung auf die Laserstrahlrichtung hat eine Frequenzmodulation zur Folge, deren Hub $\Delta\omega$ gegeben ist durch

$$\Delta\omega = 2\pi \frac{\vec{a} \cdot \vec{L}}{\lambda} \omega_{rf} \quad (5.9)$$

λ Wellenlänge des Laserlichts

Bei kugelsymmetrischem Pseudopotential erfolgt die Auslenkung $\vec{x}$ des Ions in

Strahlrichtung, also längs einer Äquipotentialfläche, da ja der Laserstrahl durch den asymptotischen Spalt zwischen den hyperbolischen Elektroden läuft. Da das elektrische Feld senkrecht auf den Äquipotentialflächen steht, verläuft auch die Bewegungsamplitude $\vec{a}$ des Ions senkrecht zur Strahlrichtung, so daß nach Gl. (5.9) keine Frequenzmodulation verursacht wird. Bei der in Bild 18 dargestellten Messung wurde ein reines Wechselfeld angelegt ($\phi_0^{DC} = 0$), so daß nach Gl. (3.5) die rücktreibende Kraft in radialer Richtung viermal schwächer ist als in axialer. Eine Berechnung des Modulationshubs nach Gl. (5.9) ergibt

$$\Delta\omega = 2\pi \times 14 \text{ MHz} \cdot \left(\frac{100V}{V_0} \right) \quad (5.10)$$

Der Einfluß des Photonenrückstoßes ist also zu schwach, um die Verbreiterung des Spektrums zu erklären. Eine im Fallenzentrum nicht verschwindende Kraft kann auch von einem Kontaktpotential durch eine teilweise Bedampfung der Elektroden mit Magnesium hervorgerufen werden. Im Prinzip sollte es möglich sein, diese Störung durch ein Kompensationsfeld zu eliminieren. Wegen des rotationssymmetrischen Aufbaus der Ionenfalle kann aber nur die z-Komponente des Störfeldes durch eine Kompensationsspannung zwischen den Polkappen beeinflusst werden. In erster Näherung soll die Geometrie der Polkappen durch einen Plattenkondensator beschrieben werden. Die Kompensationsspannung U_K bewirkt dann eine Feldstärke $E_K = U_K/(2z_0)$ im Zentrum der Ionenfalle. Die Kraft auf das Ion ist gegeben durch:

$$\vec{F}_K = \frac{eU_K}{2z_0} \vec{e}_z \quad (5.11)$$

Die Änderung der Linienbreite infolge der Kompensation läßt sich in Analogie zu Gl. (5.9) aus den Gln. (5.6–5.8) durch Austausch von $\vec{F}_L$ gegen $\vec{F}_K$ berechnen. Mit den Speicherfeldparametern $V_0 = 570V$ Wechselspannungsamplitude und $U_0 = +15V$ Gleichspannung erhält man eine Proportionalität der Linienverbreiterung zur Kompensationsspannung U_K gemäß

$$\Delta\omega = 2\pi \times 71 \text{ MHz} \cdot \left(\frac{U_K}{100 \text{ mV}} \right) \quad (\text{halbe Breite, halbe Höhe}) \quad (5.12)$$

Die Linienbreite des in Bild 19 gezeigten Spektrums ließ sich durch Anlegen einer Kompensationsspannung $U_K = 97 \text{ mV}$ zwischen den Polkappen um $2\pi \times 33 \text{ MHz}$ (halbe Breite) verringern. Nach Gl. (5.12) hätte die Kompensationsspannung nur 47 mV betragen sollen, eine Differenz, die aus der Abschirmung des Kompensationsfeldes durch die Ringelektrode zu erklären ist. Da nur die axiale Störkomponente kompensiert werden kann, ist zu erwarten, daß das Ion in radialer Richtung weiterhin vom Zentrum weggedrängt und zu verstärkter Mikrobewegung angeregt wird.

Die hier nur indirekt abgeleitete Evidenz, daß der überwiegende Anteil der kinetischen Energie aus der Mikrobewegung stammt, konnte in den Korrelationsmessungen (vgl. Kap.7.) bestätigt werden. Dabei lassen sich im Prinzip die Fourierkoeffizienten der Bewegung des Ions ermitteln, so daß eine viel detailliertere Beschreibung des Bewegungszustands möglich ist.

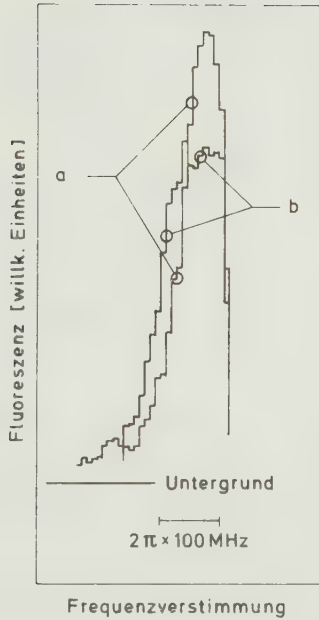


Bild 19: Anregungsspektrum eines einzelnen Ions mit (a) und ohne (b) Kompensationsspannung.

Speicherfeldamplitude $V_0 = 570V$, Gleichspannungsanteil $U_0 = +15V$

6. Der Korrelator

Um bei der Messung der Intensitätskorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ für kleine τ nicht durch die Ansprechzeit des Detektors limitiert zu sein, wurde in diesem Experiment der gleiche Kunstgriff verwendet, wie schon in der historischen Messung von Hanbury-Brown und Twiss²⁰: Die Intensität wird an einem Strahlteiler in gleiche Anteile aufgespalten und von getrennten Photomultipliern (PM) detektiert. Damals wurde der intensitätsproportionale Photostrom eines Kanals mit dem um τ verzögerten Photostrom des anderen Kanals multipliziert, so daß die Mittelung des Produkts direkt die Korrelationsfunktion ergab.

Wegen der geringen Fluoreszenzintensität eines einzelnen Ions wurde im hier beschriebenen Experiment ein digitales Nachweisverfahren verwendet (Bild 20). Dabei wird ausgenutzt, daß die Fluoreszenzintensität proportional zur Wahrscheinlichkeit ist, in einem kleinen Zeitintervall ein Photon zu nachzuweisen. Dies

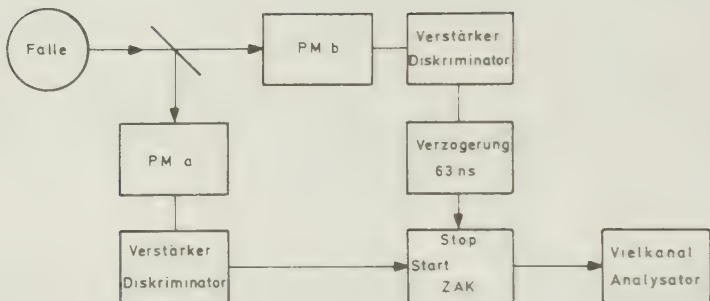


Bild 20 : Nachweisschema für die Messung der Intensitätskorrelationsfunktion

gilt, solange diese Wahrscheinlichkeit viel kleiner als 1 ist. Das am Strahlteiler aufgeteilte Signal wird einem separaten Start- bzw. Stopkanal zugeführt. Jeder Kanal besteht aus einem Photomultiplier, der für Einzelphotonennachweis beschaltet ist und einem nachfolgendem schnellen Verstärker^[18] für die Verstärkung der schnellen Photomultiplier-Pulse. Die Pulse werden in einem Diskriminator^[19] zu Normpulsen geformt. Die Normpulse des Startkanals starten die Konversion eines Zeit-Amplitudenkonverters (ZAK)^[20]. Die Pulse des Stopkanals werden 63ns verzögert und an den Stopeingang des ZAK gelegt. Der Zeit-Amplitudenkonverter wandelt nun die Zeitdifferenz zwischen Start- und Stoppuls in einen Spannungswert um, der am Ausgang abgegriffen werden kann. Der Spannungswert wird digitalisiert und in einen Vielkanalanalysator übertragen. Dieser erhöht im Pulshöhen-Analyse-Modus den Inhalt eines Kanals mit zur Spannung proportionaler Kanalnummer um Eins. Auf diese Weise entsteht nach einiger Zeit ein Histogramm, in dem die Anzahl von Zweiphotonenkorrelationen über der Zeit aufgetragen ist. Die Anzahl der so gemessenen Korrelationen für die Verzögerung τ ist proportional zur Wahrscheinlichkeit, ein Photon zur Zeit t und das nächste zur Zeit $t + \tau$ nachzuweisen. Bei kleiner Zählrate $R \ll \tau^{-1}$ ist dies gleich der Wahrscheinlichkeit, ein Photon zur Zeit t und überhaupt eines zur Zeit $t + \tau$ nachzuweisen, durch die ja die Intensitätskorrelationsfunktion definiert ist, so daß der systematische Fehler bei der Messung mit der oben beschriebenen Start/Stop Methode sehr klein ist.

Die Zeitauflösung des Detektors wird im wesentlichen durch den Diskrimina-

[18] Fa. EGG, VT110, Anstiegszeit $\tau < 1ns$

[19] Fa. Ortec, Modell 184 constant fraction discriminator

[20] Fa. Ortec, Modell 437A time to amplitude converter

tor begrenzt: da die Ausgangspulse der PM ein sehr breites Pulshöhenspektrum besitzen, ist ein flankengetriggelter Diskriminator in der Zeitauflösung auf die Größenordnung der Anstiegszeit der PM-Pulse limitiert. Der Ortec 184 Diskriminator kompensiert durch eine spezielle Elektronik diesen Effekt in erster Ordnung⁶⁶, so daß eine bessere Zeitauflösung erzielt werden kann. Die Zeitauflösung des gesamten Korrelators wurde mit intensitätsmoduliertem Licht gemessen:

$$I(t) = I_0(1 + \cos \Omega t) \quad (6.1)$$

Die zugehörige Korrelationsfunktion errechnet sich zu

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t+\tau)dt}{(\int_{-\infty}^{\infty} I(t)dt)^2} = \frac{1}{2}(2 + \cos \Omega \tau) \quad (6.2)$$

Diese Funktion würde von einem idealen Korrelator mit unendlich guter Zeitauflösung gemessen. Ein realer Korrelator 'verschmiert' einen scharfen Puls $\delta(t)$ zu einem glatten Verlauf, der durch eine Gaußfunktion genähert werden soll:

$$\delta(t) \rightarrow (\text{Korrelator}) \rightarrow e^{-\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^2 \ln 2} \quad (6.3)$$

Die endliche Zeitauflösung τ_0 des Korrelators muß durch eine Faltung der idealen Korrelationsfunktion aus Gl. (6.2) mit der Pulsantwortfunktion aus Gl. (6.3) berücksichtigt werden. Man erhält damit eine modifizierte Korrelationsfunktion

$$\widetilde{g^{(2)}}(\tau) = \frac{1}{2}(2 + \alpha \cos \Omega \tau) \quad (6.4)$$

mit einem kleineren Modulationshub α , aus dem sich die Zeitauflösung bestimmen läßt:

$$\tau_0 = \frac{2}{\Omega} \sqrt{-\ln \alpha \cdot \ln 2} \quad (6.5)$$

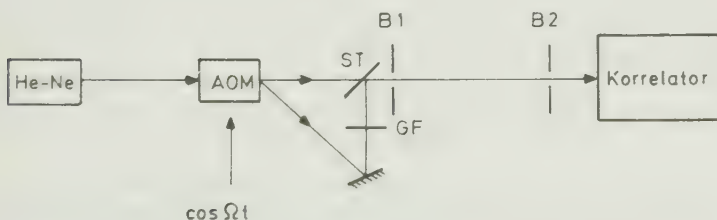


Bild 21: Versuchsanordnung zur Messung der Zeitauflösung des Korrelators. Die Komponenten sind im Text erläutert.

Die experimentelle Anordnung zur Messung der Zeitauflösung ist in Bild 21 dargestellt. Das Licht eines Helium-Neon Lasers (HeNe) wird mit einem optoakustischen Modulator (AOM) in einen um die Frequenz Ω frequenzverschobenen

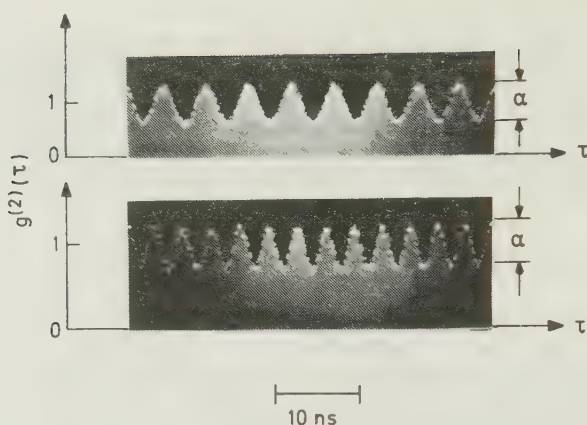


Bild 22 : Korrelationsfunktion von 100% intensitätsmoduliertem Licht bei $2\pi \times 200\text{MHz}$ (obere Messung) und $2\pi \times 300\text{MHz}$ (untere Messung) Modulationsfrequenz. Die endliche Zeitauflösung des Korrelators bestimmt die Modulationstiefe α .

und einen unverschobenen Anteil aufgeteilt. Beide Teilstrahlen werden mit einem Strahlteiler (ST) kollinear überlagert und mit Graufiltern (GF) auf gleiche Leistung abgeschwächt. Durch Beugung an der Blende B1 entsteht ein Ringsystem, aus dessen zentralen Maximum von der Blende B2 ein kleiner Teil ausgeblendet wird. Auf diese Weise ist sichergestellt, daß vom Korrelator nur ein kleiner Teil der ersten Fresnelzone beobachtet wird und das Schwebungssignal der beiden Teilstrahlen maximalen Kontrast hat. Das Ergebnis von zwei Messungen mit einer Modulationsfrequenz von $\Omega = 2\pi \times 200\text{MHz}$ bzw. $\Omega = 2\pi \times 300\text{MHz}$ ist in Bild 22 dargestellt. Unter Verwendung von Gl. (6.5) erhält man daraus eine Zeitauflösung besser als eine Nanosekunde:

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau_0^{200\text{MHz}} = 0.80\text{ns} \\ \tau_0^{300\text{MHz}} = 0.78\text{ns} \end{array} \right\} \quad \bar{\tau}_0 = 0.79\text{ns} \quad (6.6)$$

Dies ist deutlich kleiner als die Lebensdauer des $\text{Mg}^+ 3^2P_{3/2}$ -Zustands von 3.7ns , die ja die Zeitkonstante der nichtklassischen Effekte in der Resonanzfluoreszenz bestimmt.

Das Ergebnis einer Messung zur Überprüfung der Linearität und zur Festlegung der Proportionalitätskonstante bei der Umrechnung von Kanalnummern in Verzögerungszeiten ist in Bild 23 dargestellt. Bei dieser Messung wurde die Zeitdifferenz zwischen Start- und Stoppuls mit einer geeichten, einstellbaren Verzögerungsleitung variiert.

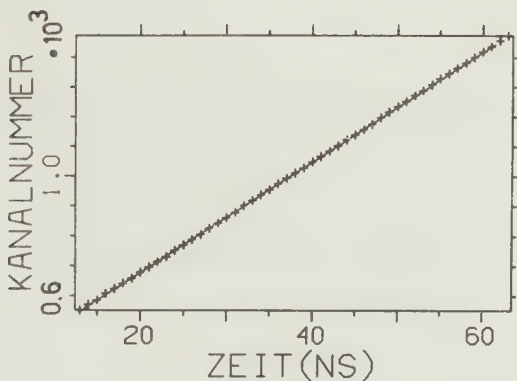


Bild 23 : Messung der Linearität des Korrelators

7. Messung der Intensitätskorrelation

Ein typisches Korrelationsspektrum eines einzelnen Ions ist in Bild 24 (c) zu sehen. Es kann unterteilt werden in einen nichtklassischen Bereich ($-20\text{ns} < \tau < 20\text{ns}$), in dem die Korrelationsfunktion durch die Rabi-Oszillationen geprägt ist und einen klassischen Bereich ($20\text{ns} < \tau < 360\text{ns}$), in dem die Effekte der atomaren Dynamik abgeklungen sind. Im nichtklassischen Bereich ist deutlich das absolute Minimum der Korrelationsfunktion an der Stelle $\tau = 0$ und damit Antibunching zu sehen. Im nichtklassischen Bereich fällt eine ungedämpfte Modulation auf, deren Ursache in einer Intensitätsmodulation der Fluoreszenz liegt (vgl. hierzu die Diskussion der Messung der Zeitauflösung des Korrelators in Kap.6.). Eine solche Intensitätsmodulation ist von Bergquist et al.⁶⁷ im Spektrum von in einer Minifalle gespeicherten Quecksilberionen beobachtet worden. Die Modulation ist dort auf ein Durchschwingen der Ionen durch den scharfen Laserfokus, dessen Strahltaille nur $25\mu\text{m}$ betrug, zurückgeführt worden. Im hier beschriebenen Experiment ist der Laserfokus mit $40 \times 110\mu\text{m}$ größer. Eine dagegen noch kleine Modulationsamplitude von $A = 10\mu\text{m}$ würde bei einer Modulationsfrequenz von $\omega_{rf} = 2\pi \times 11\text{MHz}$ bereits zu einer spektralen Verbreiterung von $\Delta\omega = \omega_{rf} \frac{A}{(\lambda/2\pi)} = 2\pi \times 2.5\text{GHz}$ führen. Das gemessene Anregungsspektrum ist dagegen viel schmalbandiger (vgl. Bild 16), so daß ein geometrischer Effekt ausgeschlossen werden muß.

Es ist aber auch durch die Bewegung in einem homogenen Feld eine Intensitätsmodulation der Fluoreszenz durch den Dopplereffekt möglich. Im Ruhesystem des oszillierenden Ions ist die Laserfrequenz moduliert, damit auch die gestreute Intensität. Zur Kühlung ist die Laserfrequenz immer auf die langwellige Flanke der Resonanz verstimmt. Deshalb ist bei kleiner Amplitude die gestreute Intensität linear von der Geschwindigkeit abhängig und eine harmonische Bewegung des Ions führt zu einer harmonischen Modulation der Resonanzfluoreszenz (vgl. Bild 25). Nach der Betrachtung in Kap.3.1. enthält die Bewegung des Ions Anteile bei den Säkularfrequenzen und wesentlich höherfrequente Anteile durch die Mikrobewegung unter dem Einfluß des Speicherfeldes. Die Flanke des Resonanz-

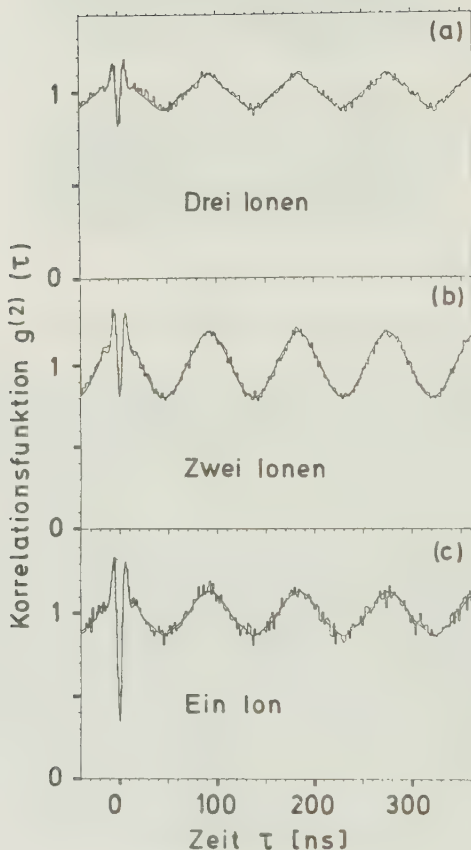


Bild 24 : Korrelationsfunktion für 1, 2 und 3 gespeicherte Ionen. Der bei $\tau = 0$ beobachtbare Antibunchingeffekt wird mit zunehmender Ionenzahl schwächer. Die ungedämpfte Modulation der Korrelationsfunktion wird von der Mikrobewegung der Ionen verursacht. Wegen ihrer Coulomb-Abstoßung befinden sich drei Ionen in einem Gebiet verstärkter Speicherfeldamplitude, so daß in der Modulation höhere Harmonische auftreten. Die Modulationstiefe im Dreionen- Spektrum ist kleiner, weil die Ionen nicht gleichphasig schwingen und sich die Einzelbeiträge zur Modulation teilweise kompensieren.

profils dient als Kennlinie für die Umwandlung einer Geschwindigkeitsmodulation in eine Intensitätsmodulation:

$$I(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \alpha_n \cos \Omega_n t \quad (7.1)$$

Diese Modulation überträgt sich auf die Korrelationsfunktion. Analog zu Gl. (6.2) erhält man

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\alpha_0^2 + \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{\infty} \alpha_n^2 \cos \Omega_n \tau}{\alpha_0^2} \quad (7.2)$$

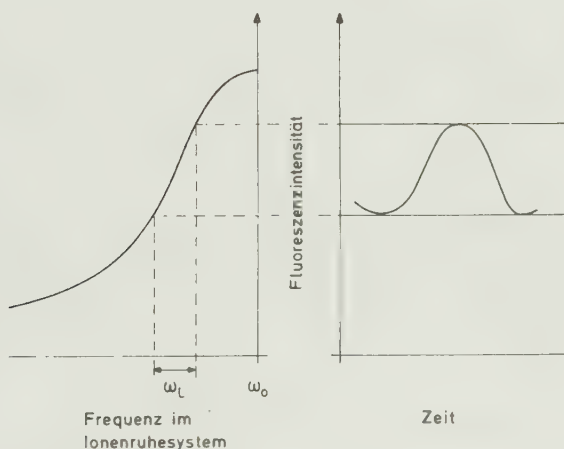


Bild 25 : Kennlinie für die Umwandlung einer oszillierenden Bewegung in eine Intensitätsmodulation: Durch den Dopplereffekt ist im Ruhesystem des Ions die Laserfrequenz moduliert und damit auch die Stärke der Fluoreszenz.

Aus der Korrelationsfunktion läßt sich demnach das Fourierspektrum der Bewegung des Ions bestimmen, sofern die Kennlinie (Bild 25) bekannt ist. Im Spektrum von Bild 24 (c) ist im klassischen Bereich eine Modulation mit der Periode 91ns zu sehen. Dies entspricht genau der Speicherfrequenz von $2\pi \times 11\text{MHz}$. Nach Kap.3.1. sollten die Geschwindigkeitsamplituden von Säkularbewegung und Mikrooszillation von gleicher Größenordnung sein. Auch nach einer Erweiterung der Meßzeit auf $\tau_{\text{max}} = 1\mu\text{s}$ konnte in der Korrelationsfunktion kein Anzeichen der Säkularbewegung gesehen werden, obwohl bei Säkularfrequenzen von

$\omega_r = 2\pi \times 0.7 \text{ MHz}$ bzw. $\omega_z = 2\pi \times 1.1 \text{ MHz}$ mehr als eine halbe Periode in den Meßbereich fallen sollte. Dies bestätigt die bereits in Kap.5.3. bei der Diskussion der Anregungsspektren aufgestellte Vermutung, daß durch eine Störung der Quadrupolsymmetrie des Speicherpotentials die Mikrobewegung eine wesentlich größere Energie besitzt als die Säkularschwingungen. Bei Betrachtung der Korrelationspektren von drei gespeicherten Ionen (Bild 24 (a)) fällt eine Abweichung der klassischen Modulation vom harmonischen Verlauf auf. Vermutlich ist durch die Coulombabstoßung die Schwingungsamplitude der Ionen so groß, daß die Kennlinie ihre lineare Charakteristik verliert (vgl. Bild 25) und höhere Harmonische in der Intensitätsmodulation auftreten.

Im nichtklassischen Bereich der Korrelationsfunktion ist deutlich die Abnahme des Antibunchingeffekts mit zunehmender Ionenzahl zu sehen. Um einen quantitativen Vergleich mit der Theorie durchzuführen, muß der Einfluß des Streulichtuntergrunds auf die Korrelationsfunktion berücksichtigt werden. Dies führt zu Zusatztermen im Ausdruck für $g^{(2)}(0)$, die sowohl die inkohärente Summe von Signal- und Streulichtintensitäten am Detektor als auch eine kohärente Überlagerung der Amplituden berücksichtigen. Da im Experiment viele Fresnelzonen der Ionenfalle auf die Photokathode abgebildet werden, deren Streulichtanteile dort mit entgegengesetzten Phasen mit dem Signal der punktförmigen Ionen interferieren, kann der kohärente Zusatzterm vernachlässigt werden. Aus demselben Grund kann auch die kohärente Überlagerung des von verschiedenen Ionen gestreuten Signals vernachlässigt werden: Wegen der gegenseitigen Coulomb-Abstoßung ist bei einer Säkularfrequenz von $2\pi \times 1 \text{ MHz}$ der Abstand von zwei $^{24}\text{Mg}^+$ -Ionen mit $7\mu\text{m}$ groß im Vergleich zur Wellenlänge und es ist zu erwarten, daß auch die Fluktuationen des Aufenthaltsorts der Ionen von gleicher Größenordnung sind. Die Abhängigkeit der Intensitätskorrelationsfunktion $g_N^{(2)}(0)$ für N Ionen vom Untergrund U lautet dann⁴:

$$g_N^{(2)}(0) = \frac{N(N-1)S^2 + 2NSU + U^2}{(NS + U)^2} \quad (7.3)$$

S Fluoreszenzsignal eines Ions

Für vernachlässigbaren Untergrund vereinfacht sich dieser Ausdruck zu einem Spezialfall von Gl. (2.29):

$$1 - g_N^{(2)}(0) = \frac{1}{N} \quad (7.4)$$

Nach Gl. (7.4) ist der Antibunchingeffekt $1 - g_N^{(2)}(0)$ umgekehrt proportional zur Ionenzahl. Diese Abhängigkeit sollte auch in den Messungen beobachtbar sein, wenn sie gemäß Gl. (7.3) korrigiert werden. Auch nach Berücksichtigung des Untergrunds ist jedoch der Meßwert für $g_N^{(2)}(0)$ immer noch zu groß. Dies ist vermutlich auf die endliche Zeitauflösung des Korrelators zurückzuführen, die ja nach Kap.6. dazu führt, daß schnelle Modulationen mit verringerter Modulationstiefe dargestellt werden. Führt man den endlichen Wert von $g_N^{(2)}(0)$ in der Einzelionen-Messung (Bild 24c) völlig auf die endliche Zeitauflösung zurück und rechnet die so

erhaltene Korrektur (=16%) in die anderen Messungen ein (Bild 24a,b), so ergibt sich für diese eine gute Übereinstimmung mit der Theorie (vgl. Tab.3).

Ionenzahl N	Signal S [kHz]	Untergrund U [kHz]	relativer Anteil des Untergrunds an $g^{(2)}(0)$ [%]	$1 - g^{(2)}(0)$ korrigiert um U und Zeitaufbl.	Theoriewert für $1 - g^{(2)}(0)$
1	22	2	16	1.00†	1
2	17.5	4	10	0.43	0.5
3	18	6	6.3	0.32	0.33

†der Wert wurde angepaßt

Tabelle 3

Korrektur des gemessenen Antibunchingeffekts und Vergleich mit dem Theoriewert für unterschiedliche Ionenzahlen. Aus den in Bild 24 gezeigten Messungen erhält man $1 - g^{(2)}(0)$ als relative Abweichung der gemessenen Korrelationsfunktion vom Maximum der klassischen Modulation.

Um quantitative Aussagen über den Bewegungszustand des Ions zu machen und die gemessenen Korrelationsspektren im nichtklassischen Bereich mit der Theorie zu vergleichen, wurde für die Meßpunkte eine Ausgleichsfunktion nach der Methode der kleinsten Quadrate berechnet^[21]. Im klassischen Bereich wurden die Daten approximiert durch die Funktion

$$f_{kl}(\tau) = \sum_{n=0}^5 a_n \cos(nbr - c)$$

mit den Parametern

$a_0 - a_5$

Fourierkomponenten der Modulation

b

Kreisfrequenz der Modulation

c

Festlegung des Zeitnullpunkts

(7.5)

Bei allen Messungen war die Modulationsfrequenz b in guter Näherung durch die Speicherfeldfrequenz ω_{rf} gegeben. Die Nichtlinearität der Modulation im Spektrum Bild 24 (a) drückt sich in einem Anharmonizitätsterm $(a_3/a_0) = 10\%$ gegenüber 2% bei den anderen Messungen (Bild 24 (b)-(c)) aus. Im nichtklassischen Bereich wird der nach Kap.2.3. erwartete Verlauf der Korrelationsfunktion von der klassischen Modulation überlagert. Deshalb werden dort die Daten approximiert

[21]Routine E04HFE der Fortran NAGFLIB:1656/0:MK11 (Nov.1983)

durch (vgl. Gl. (2.22)):

$$g^{(2)}(\tau) = f_{kl}(\tau) \times f_{qm}(\tau)$$

mit

$$f_{qm}(\tau) = 1 - Ae^{-B\tau} \left(\cos C\tau + \frac{B}{C} \sin C\tau \right)$$

mit den Parametern

(7.6)

$A = 1$ – Anteil der Untergrundkorrelationen

durch Streulichtkoinzidenzen und Zeitaufösung

$B = 0.75 \cdot$ natürliche Linienbreite

C = Frequenz der gedämpften Rabi-Oszillationen

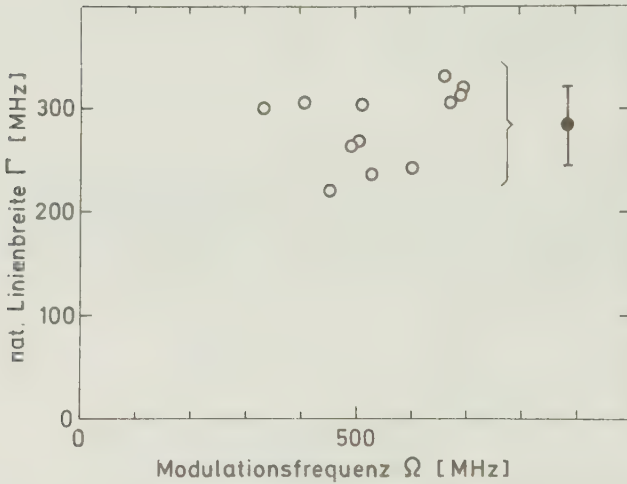


Bild 26: Bestimmung der Lebensdauer τ aus der Abklingzeit der Rabi-Oszillationen. Die natürliche Linienbreite $\Gamma = \tau^{-1}$ wurde gemäß Gl. (7.6) aus dem Parameter B der Ausgleichskurve bestimmt. Eine systematische Abhängigkeit der so ermittelten Linienbreite von der Laserintensität ist nicht zu erkennen.

Aus der Abklingzeit $1/B$ der Rabi-Oszillationen läßt sich die Lebensdauer τ_L des $^{24}\text{Mg}^+ \ 3^2P_{3/2}$ -Zustands bestimmen. Eine Mittelung über 12 unabhängige Messungen (Bild 26) ergab $\tau_L = (3.53 \pm 0.26)\text{ns}$ in guter Übereinstimmung mit $\tau_L = (3.67 \pm 0.18)\text{ns}$ aus einer Hanle-Effekt Messung⁶⁸. Offensichtlich war bei den

Messungen die Sättigung so stark, daß die Intensitätsabhängigkeit der Abklingzeit B^{-1} (vgl. Kap.2.3.2.) vernachlässigt werden kann.

Die Frequenz der gedämpften Rabi-Oszillationen läßt sich in zweifacher Hinsicht auswerten:

1. Die nach Gl. (2.22) erwartete linear-affine Abhängigkeit des Parameters C^2 von der Laserintensität kann überprüft werden.
2. Aus der Rabi-Frequenz läßt sich die sättigungsverbreiterte natürliche Linienbreite errechnen. Bei bekannter Verstimmung der Laserfrequenz von der Resonanz ist somit der Kennlinienverlauf für die Umwandlung der Oszillation des Ions in eine Intensitätsmodulation bekannt. Aus der klassischen Modulation der Korrelationsfunktion kann damit die Bewegungsamplitude des Ions berechnet werden. Aus der Bewegungsamplitude kann dann die Temperatur der kinetischen Energie bestimmt werden. Ein Meßverfahren für die Temperatur ist von großem Interesse für die hochauflösende Spektroskopie an einzelnen Ionen, da damit die Frequenzverschiebung aufgrund des relativistischen Dopplereffekts (=Zeitdilatation) abgeschätzt werden kann.

7.1. ABHÄNGIGKEIT DER INTENSITÄTSKORRELATION VON DER LASERINTENSITÄT

In Bild 27 sind vier bei verschiedenen Intensitäten gemessene Korrelationsspektren dargestellt. Um einen anschaulichen Vergleich der Intensitätsabhängigkeit zu ermöglichen, wurde der konstante Term a_0 aus der Fourierentwicklung auf Eins normiert. Weiterhin wurden die Untergrundkoinidenzen von den Datenpunkten abgezogen und die klassische Modulation wurde herausdividiert. Wegen der Verstimmung der Laserfrequenz von der Resonanz um $-2\pi \times 40\text{MHz}$ tritt auch bei kleinen Intensitäten stets ein oszillatorisches Verhalten von $g^{(2)}(\tau)$ auf. Die Abhängigkeit der Oszillationsfrequenz von der Intensität ist in Bild 28 dargestellt. Die Extrapolation der Ausgleichsgerade auf verschwindende Intensitäten sollte gemäß

$$\Omega^2 = \Omega_{R0}^2 + \Delta^2 - \left(\frac{\Gamma}{4}\right)^2 \quad (7.7)$$

nach Addition des Dämpfungsterms $\left(\frac{\Gamma}{4}\right)^2$ die Verstimmung reproduzieren. Der aus Bild 28 ermittelte Wert von $\Delta = 2\pi \times 49\text{MHz}$ steht in annehmbarer Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert $\Delta = 2\pi \times 40\text{MHz}$.

7.2. BERECHNUNG DER TEMPERATUR AUS DEN KORRELATIONSSPEKTREN

Die Fourierkoeffizienten der klassischen Modulation von $g^{(2)}(\tau)$ sind mit der Zeitabhängigkeit der gestreuten Fluoreszenzintensität nach Gl. (7.1,7.2) verknüpft. Wird in erster Näherung nur der lineare Term der Kennlinie berücksichtigt, so wird die Fluoreszenzintensität aufgrund der Mikrobewegung harmonisch moduliert:

$$I(t) = \alpha_0 + \alpha_1 \cos \Omega t \quad (7.8)$$

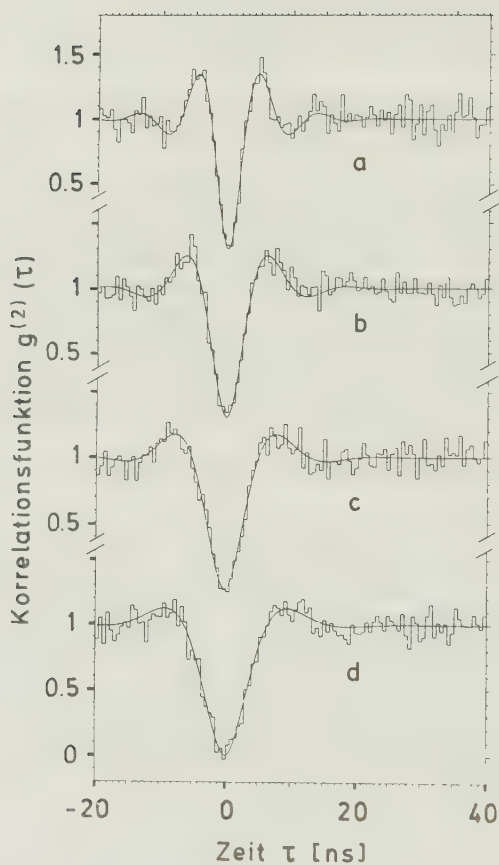


Bild 27 : Abhängigkeit der Intensitätskorrelationsfunktion von der Laserintensität

(a) $I = 5 \text{ W/cm}^2$

(b) $I = 1.8 \text{ W/cm}^2$

(c) $I = 0.84 \text{ W/cm}^2$

(d) $I = 0.56 \text{ W/cm}^2$

Obwohl die Absolutwerte der Intensitäten mit relativ großem Fehler behaftet sind, konnte die Intensität durch Verwendung geeichter Graufilter (Toleranz $\pm 5\%$) definiert variiert werden.

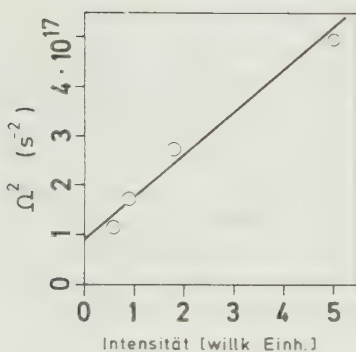


Bild 28: Ergebnis der Kurvenanpassung für die Messungen in Bild 27. Da die resonante Rabi-Frequenz Ω_{R0} proportional zur Feldstärke ist, hängt Ω^2 linear-affin von der Laserintensität ab.

Für die Korrelationsfunktion folgt daraus mit Gl. (7.2):

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{1}{2}(2 + \alpha \cos \Omega \tau) \quad (7.9)$$

mit

$$\alpha = \left(\frac{\alpha_1}{\alpha_0} \right)^2$$

Um diesen Zusammenhang zu überprüfen wurde unmittelbar im Anschluß an die Messung eines Korrelationsspektrums mit gleicher Laserintensität ein Anregungsspektrum aufgezeichnet (Bild 29). Aus der Ausgleichsfunktion an das Korrelationsspektrum in Bild 29 ergibt sich im klassischen Bereich ein Modulationshub von $\alpha/2 = 0.158$ (nach Subtraktion des Untergrunds). Aus der resonanten Rabi-Frequenz Ω_{R0} erhält man die sättigungsverbreiterte Linienbreite Γ_{sat} zu⁶⁹

$$\Gamma_{sat} = \sqrt{\Gamma^2 + 2\Omega_{R0}^2} \quad (\text{volle Breite, halbes Maximum}) \quad (7.10)$$

Die resonante Rabi-Frequenz Ω_{R0} ergibt sich nach Gl. (7.7) aus der Modulationsfrequenz Ω der Ausgleichskurve $f_{qm}(\tau)$. Aus dem Korrelationsspektrum in Bild 29 erhält man $\Omega = 3.84 \times 10^8 \text{ Hz}$ und damit $\Gamma_{sat} = 2\pi \times 80 \text{ MHz}$. Mit der bekannten Laserverstimmung von $2\pi \times 40 \text{ MHz}$ ist der Verlauf der Kennlinie für die Umwandlung der Laserfrequenzmodulation im Ruhesystem des Ions in eine Intensitätsmodulation festgelegt und es läßt sich die Oszillationsamplitude $A_{||}$ des Ions für die Bewegungskomponente in Laserstrahlrichtung berechnen. Mit den oben genannten Werten erhält man einen Frequenzhub von $2\pi \times 23 \text{ MHz}$ und daraus eine Oszillationsamplitude $A_{||}$ von 93 nm. Für die Temperatur der kinetischen Be-

wegung $T = \frac{m\omega_{rf}^2 A_{\parallel}^2}{2k_B}$ ergibt dies 60mK. Mit diesem Verfahren wird allerdings nur die Energie der Bewegung in Laserstrahlrichtung gemessen, da die Auswertung letztlich auf einer Bestimmung des linearen Dopplereffekts beruht. Auch für die Bewegung senkrecht zum Laserstrahl ist eine vergleichbar hohe Temperatur zu erwarten, da sowohl die axiale als auch die radialen Schwingungsmoden wegen ihrer nichtverschwindenden Projektion auf die Strahlrichtung gekühlt werden.

Es ist nun interessant, mit den aus der Korrelationsmessung bestimmten Werten für Γ_{sat} und $A_{\parallel}$ ein Anregungsspektrum zu berechnen. Nach Gl. (3.18) besteht ja das frequenzmodulierte Spektrum aus dem Träger und äquidistanten Seitenbändern im Abstand der Modulationsfrequenz ω_{rf} . Faltet man in diesen Frequenzkamm noch die sättigungsverbreiterte Linienbreite hinein, so erhält man für das Anregungsspektrum:

$$I(\Delta) = A' + B' \cdot \left(\sum_{n=0}^7 \frac{J_n^2(\beta)}{(\Delta + n\omega_{rf})^2 + (\frac{\Gamma_{sat}}{2})^2} + \sum_{n=1}^7 \frac{J_n^2(\beta)}{(\Delta - n\omega_{rf})^2 + (\frac{\Gamma_{sat}}{2})^2} \right)$$

mit

A' = Streulichtuntergrund

B' = Normierungsfaktor

J_n = Besselfunktion n-ter Ordnung

$\beta = 2\pi \times \frac{A_{\parallel}}{\lambda}$ (Modulationsindex)

Δ = Laserverstimmung

(7.11)

Die Besselfunktionen erster und zweiter Ordnung wurden aus einer Reihenentwicklung berechnet^[22], die höheren Ordnungen können mit einer Rekursionsrelation berechnet werden⁷⁰. Das berechnete Spektrum wurde lediglich in den Parametern A' und B' (Untergrund und Normierung) an das gemessene Anregungsspektrum angepaßt und den Datenpunkten überlagert (Bild 29). Es ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung.

Bei sehr niedrigen Temperaturen wird das Anregungsspektrum nur wenig von der Bewegung des Ions beeinflusst, da die Dopplerverbreiterung klein im Vergleich zur sättigungsverbreiterten natürlichen Linienbreite ist. Gerade in diesem Bereich ist aber die Temperaturdiagnose über die Korrelationsfunktion empfindlich, da dann bei linearer Kennlinie die Intensitätsmodulation proportional zur Schwingungsamplitude ist. Es gilt dann $\frac{\alpha_1}{\alpha_0} \sim A_{\parallel} \sim \sqrt{T}$ und mit Gl. (7.9) $\alpha \sim T$. Die in der Intensitätskorrelationsfunktion direkt ablesbare Modulationstiefe ist also proportional zur Temperatur.

[22] Routinen S17AEE und S17AFE der NAGFLIB:1656/0:MK11 (Nov. 1983)

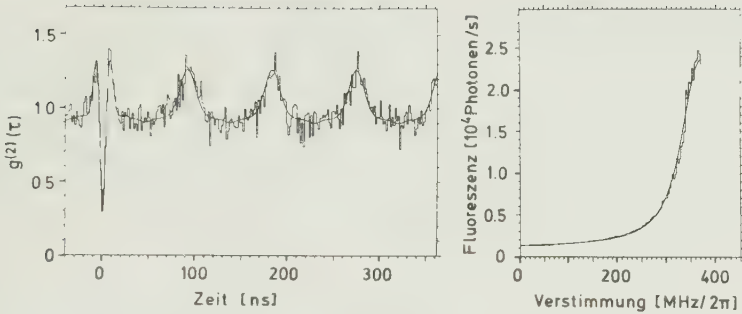


Bild 29: Berechnung des Anregungsspektrums aus der Korrelationsfunktion. Aus dem nichtklassischen Teil der Intensitätskorrelationsfunktion erhält man über die Rabi-Frequenz die sättigungsverbreiterte natürliche Linienbreite. Zusammen mit der Frequenzmodulation, die aus dem Verlauf der Korrelationsfunktion im klassischen Bereich ermittelt wird, kann dann das Anregungsspektrum berechnet werden.

Das rechte Teilbild zeigt das gemessene Anregungsspektrum, dem das berechnete überlagert wurde. Angepaßt wurden lediglich Untergrund und Normierung. Die kinetische Bewegung entspricht einer Temperatur von 60mK.

7.3. NACHWEIS DER SUB-POISSON STATISTIK

Nach den Ausführungen in Kap.2.4. sollte das Auftreten von Antibunching direkt mit einer Sub-Poisson Statistik der in einem Zeitintervall ΔT gemessenen Photonen verbunden sein. Dieser Zusammenhang konnte mit einer geringfügigen Ergänzung des Korrelators überprüft werden (Bild 30). Die Zählraten im Start- und im Stopkanal des Korrelators wurden über die Diskriminatorschwelle auf gleiche Werte eingestellt. Mit einem Zähler^[23] wurde während der Gesamtmeßzeit T die Summe N aller Start- und Stoppulse aufaddiert. Unter Annahme einer Poisson-Statistik kann hieraus die Anzahl ΔN von Koinzidenzen im Intervall $-\frac{\Delta T}{2} \leq \tau \leq \frac{\Delta T}{2}$ berechnet werden. Es ist

$$\Delta N = N_{Start} \cdot P_{Stop}(\Delta T) \quad (7.12)$$

Dabei ist N_{Start} die Anzahl der Startpulse während der Gesamtmeßdauer:

$$N_{Start} = \frac{N}{2} - \delta N \quad (7.13)$$

δN berücksichtigt die Totzeit des Korrelators von 400ns, die dadurch entsteht,

[23] Fa. Hewlett-Packard, Modell HP5345A

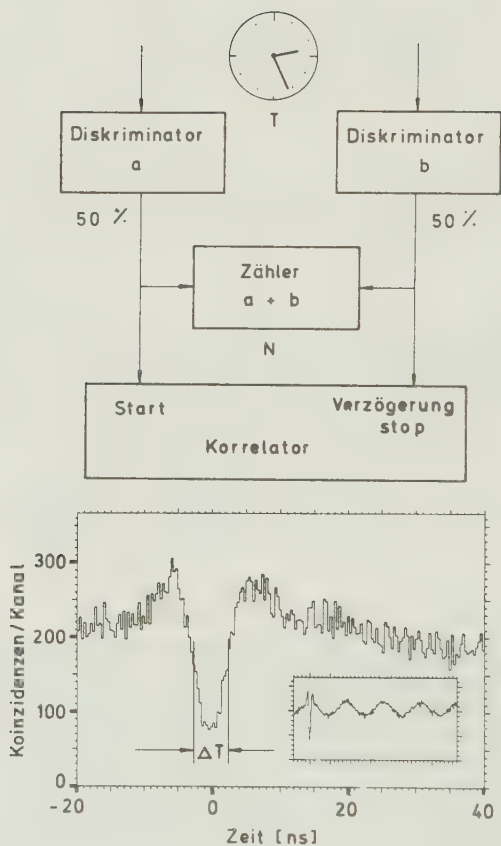


Bild 30: Messung der Sub-Poisson Statistik mit dem Korrelator

Aus der Gesamtmeßzeit T und der Zahl N der nachgewiesenen Photonen läßt sich unter Annahme einer Poisson-Statistik die Zahl der Koinzidenzen im Zeitintervall ΔT ausrechnen. Die in der Resonanzfluoreszenz gemessene Zahl von Koinzidenzen ist demgegenüber signifikant kleiner.

daß nach einem Startpuls während der am Zeit-Amplitudenkonverter eingestellten maximalen Verzögerungszeit (im Experiment 400ns) weitere Startpulse ignoriert werden. $\frac{\delta N}{N/2}$ ist von der Größenordnung $\frac{N}{2} \cdot \frac{400ns}{T} \approx 10^{-2}$ und soll hier vernachlässigt werden. $P_{Stop}(\Delta T)$ bezeichnet die Wahrscheinlichkeit, in einem Zeitintervall $t_0 - \frac{\Delta T}{2} < \tau < t_0 + \frac{\Delta T}{2}$ einen Stoppuls zu detektieren, wenn zur Zeit t_0 ein Startpuls detektiert wurde. Unter Annahme einer Poisson-Statistik ist diese Wahrscheinlichkeit unabhängig von t_0 und man erhält

$$P_{Stop}(\Delta T) = \sum_{k=1}^{\infty} e^{-\langle n \rangle} \cdot \frac{\langle n \rangle^k}{k!} \quad (7.14)$$

Dabei bezeichnet $\langle n \rangle$ den Mittelwert der in einem Intervall ΔT im Stopkanal nachgewiesenen Photonenanzahl:

$$\langle n \rangle = \frac{N}{2} \cdot \frac{\Delta T}{T} \quad (7.15)$$

Im Vergleich zur berechneten Zahl ΔN wurden in der Resonanzfluoreszenz signifikant weniger Koinzidenzen im Intervall ΔT gemessen. Die Meßdaten für die in Bild 30 dargestellte Messung sind in Tabelle 4 zusammengefaßt.

Messung der Sub-Poisson Statistik

Gesamtmeßzeit $T = 1252S$

Insgesamt detektierte Zahl von Start- und Stoppulsen $N = 5.944 \times 10^7$ Pulse

Zeitintervall für die Zählstatistik $\Delta T = 4.607ns$

Anzahl von Koinzidenzen bei Poisson-Statistik $\Delta N = 3250$ Ereignisse

gemessene Zahl von Koinzidenzen $\Delta N_g = 1583$ Ereignisse

Abweichung in Schwankungsbreiten σ

$$\frac{\Delta N - \Delta N_g}{\sqrt{\Delta N}} = 29\sigma$$

Tabelle 4

Obwohl die Abweichung der gemessenen Zahl von Koinzidenzen vom Wert einer Poisson-Statistik mit 29 Standardabweichungen sehr signifikant ist, kann gemäß der Diskussion in Kap.2.4. nur eine kleine Abweichung der normierten Varianz Q der Photoelektronen vom Wert 0 einer Poisson-Statistik erwartet werden. Mit Gl. (2.39) läßt sich Q aus der gemessenen Korrelationsfunktion berechnen,

wenn folgende Substitutionen vorgenommen werden:

$$\begin{aligned} R &= \frac{N}{2T} \\ g^{(2)}(\tau) &= \frac{G^{(2)}(\tau)}{R^2} \\ G^{(2)}(\tau) &= \frac{K(j(\tau))}{\delta T \cdot T} \end{aligned} \quad (7.16)$$

Dabei bezeichnet δT das einem Kanal entsprechende Zeitintervall. $K(j(\tau))$ ist die Anzahl von Koinzidenzen, die mit einer der Zeit τ entsprechenden Kanalnummer im VKA gespeichert wurde. Wegen der diskreten Zeitauflösung des VKA muß das in Gl. (2.39) auftretende Doppelintegral durch eine Doppelsumme ersetzt werden. Damit erhält man für die normierte Varianz folgenden Ausdruck:

$$Q = \frac{N \cdot \Delta T}{2T} \left[\left(\frac{N}{2T} \right)^{-2} \cdot (\delta T \cdot T)^{-1} \cdot \frac{2}{k(k+1)} \cdot \sum_{i=1}^k \sum_{j=1}^i K(j) - 1 \right] \quad (7.17)$$

Wählt man k entsprechend einer Verzögerungszeit von $\frac{\Delta T}{2} = 2.3 ns$, so erhält man aus der in Bild 30 dargestellten Messung zusammen mit den Parametern aus Tab.4 eine normierte Varianz von $Q = 7 \times 10^{-5}$.

Die Abweichung von der Poisson-Statistik ist anschaulich im gleichmäßigen Photonenfluß der Resonanzfluoreszenz eines einzelnen Ions begründet. Der klassisch noch beschreibbare Zustand mit den geringsten Intensitätsschwankungen, der kohärente Zustand²², hat die Eigenschaft, daß die Wahrscheinlichkeit, ein Photon zu detektieren, unabhängig von der Vorgeschichte immer gleich groß ist. Hieraus folgt unmittelbar die Poisson-Statistik des kohärenten Zustands. Für die Resonanzfluoreszenz des Zweiniveaumatoms(-ions) ist durch die Rabi-Oszillationen nach der Emission eine Totzeit gegeben, während der, etwas vereinfacht gesprochen, kein weiteres Photon emittiert werden kann. Allerdings ist wegen der kleinen Nachweiseffizienz des Detektors der mittlere zeitliche Abstand zwischen nachgewiesenen Photonen viel größer als diese Totzeit, so daß die Abweichung von der Poisson-Statistik nur gering ist. Trotzdem wird diese kleine Abweichung in kurzer Meßzeit signifikant nachgewiesen, da durch den hohen Wirkungsquerschnitt des schnellen Dipolübergangs für die Resonanzstreuung eine große Zahl von Photonen ausgewertet werden kann.

8. Ausblick: hochauflösende Spektroskopie mit gespeicherten Ionen

Da mit der Ionenspeichertechnik Störungen durch Stöße eliminiert werden können und lange Beobachtungszeiten möglich sind, wurden schon früh Hyperfeinübergänge von gespeicherten Ionen mit hoher Auflösung gemessen⁷¹. Später wurde vorgeschlagen, die Möglichkeiten der hochauflösenden Spektroskopie an gespeicherten Ionen zur Grundlage eines Frequenzstandards zu machen⁷²⁻⁷⁴. Die, beispielsweise in der Allan-Varianz messbare, prinzipiell erreichbare Genauigkeit G eines Frequenzstandards ist proportional zur Güte des atomaren Übergangs ($\frac{\omega}{\Delta\omega}$) und zum Signal/Rausch-Verhältnis ($\frac{S}{R}$):

$$G \sim \left(\frac{\omega}{\Delta\omega}\right) \times \left(\frac{S}{R}\right)$$

Die zur Zeit genauesten Frequenzstandards verwenden Mikrowellenübergänge, bei denen die Relaxation aufgrund der spontanen Emission völlig vernachlässigt werden kann. Die Linienbreite $\Delta\omega$ wird dann durch die Dauer der Beobachtungszeit limitiert. Hierbei sind jedoch Praktikabilitätsgrenzen gesetzt, da erst nach Ablauf der Beobachtungsperiode ein Regelsignal abgeleitet werden kann, mit dem der Frequenzstandard an den Mikrowellenübergang gekoppelt wird. Eine lange Beobachtungszeit hat eine kleine Regelgeschwindigkeit zur Folge, die einen gut vorstabilisierten Frequenzstandard voraussetzt.

Auch durch eine Steigerung des Signal/Rausch-Verhältnisses ist eine Verbesserung der Genauigkeit möglich, da hierdurch die Linienmitte mit größerer Präzision bestimmt werden kann. Jedoch läßt sich auf diese Weise die Präzision eines Frequenzstandards nicht beliebig steigern, da bereits kleine Asymmetrien in der Linienform zu systematischen Fehlern führen.

Letztlich scheint der vielversprechendste Weg zur Steigerung der Genauigkeit eines Frequenzstandards die Wahl einer möglichst großen Arbeitsfrequenz ω zu sein. Eine prinzipielle Beschränkung wird nur durch die Forderung auferlegt, daß die Arbeitsfrequenz noch digital meßbar sein muß. Da es durch die Entwicklung von nichtlinearen Mischtechniken in den vergangenen Jahren möglich geworden ist, Frequenzen bis in den optischen Bereich hinein zu zählen⁷⁵, können im Prinzip durch die Spektroskopie metastabiler Zustände im optischen Bereich Übergänge sehr hoher Güte genutzt werden. Die dabei notwendige Unterdrückung von Störungen kann mit der Ionenfallen-Technik in hohem Maße realisiert werden: Durch Lokalisierung eines einzelnen Ions im Zentrum einer Paul-Falle wird der lineare Doppler-Effekt eliminiert; der quadratische Doppler-Effekt wird durch Strahlungskühlung reduziert. Durch die lange Speicherzeit wird die Wechselwirkungszeitverbreiterung unterdrückt und Störungen durch die Krümmung der Wellenfronten sind ausgeschaltet, wenn das Aufenthaltsgebiet des Ions auf das Zentrum der Strahltaile beschränkt ist.

Die sehr geringe Fluoreszenz bei der Spektroskopie eines langlebigen Zustands kann durch Kopplung an ein kurzlebiges Niveau mit einem zweiten Laser wirkungsvoll verstärkt werden. Dieser Mechanismus soll am Beispiel des von Deh-

melt 1973 vorgeschlagenen 'Thallium-Monoionen-Oszillator'⁷⁶ kurz skizziert werden: Das Thallium-Ion besitzt ein erdalkaliartiges Zwei-Elektronen Spektrum mit einer starken Interkombinationslinie vom 1S_0 zum 3P_1 -Zustand der Wellenlänge 191nm und einen metastabilen 3P_0 -Zustand mit einer Lebensdauer von 50ms. Bei sättigender Anregung des schnellen Übergangs werden 2×10^7 Photonen/s aus dem Laserstrahl absorbiert und das Ion kann in kurzer Zeit in den Lamb-Dicke Bereich gekühlt werden. Wird mit einem zweiten, schmalbandigen Laser der metastabile Zustand besetzt, so ist die starke Fluoreszenz für etwa 50ms abgeschaltet. Auch bei sehr kleiner Nachweiseffizienz kann dieses Fehlen von 10^6 Photonen zuverlässig nachgewiesen werden, so daß jeder Absorptionsvorgang in den metastabilen Zustand beobachtet wird. Nachdem einige Zeit diskutiert wurde⁷⁷, ob diese 'Quantum Jumps' als Sprung der Fluoreszenzintensität beobachtbar sind oder nur zu einer geringen Erniedrigung der Zählrate führen, konnte sowohl experimentell⁷⁸ als auch theoretisch⁷⁹ die Existenz von Hell- und Dunkelphasen in der Resonanzfluoreszenz eines gekoppelten Dreiniveau-Systems mit stark unterschiedlichen Lebensdauern bestätigt werden.

Um die hohe Güte des langsamen Übergangs voll auszunutzen, muß der metastabile 3P_0 -Zustand, dessen natürliche Linienbreite etwa $2\pi \times 30\text{Hz}$ beträgt, mit einem Laser kleinerer Linienbreite angeregt werden. Nach den Fortschritten in der Entwicklung ultrastabiler Farbstofflaser in den letzten Jahren⁸⁰⁻⁸², ist diese Anforderung in den Bereich des Machbaren gerückt.

Problematisch ist die Erzeugung der Laserstrahlung zur Sättigung des schnellen Übergangs der Wellenlänge 191nm. Durch Frequenzverdopplung einer Ar^+ -Laserlinie und anschließende Summenfrequenzzmischung in einem Kaliumpentaborat-Kristall ist es bereits gelungen, kontinuierlich schmalbandige Strahlung der Wellenlänge 194nm zu erzeugen⁸³.

Experimentell leichter realisierbare Wellenlängen für die Anregung der $^1S_0 \rightarrow ^3P_1$ -Interkombinationslinie sind bei den leichteren Ionen der dritten Hauptgruppe des Periodensystems gegeben: In^+ , Ga^+ und Al^+ besitzen ein dem Thallium-Ion vergleichbares Spektrum mit einem langlebigen 3P_0 -Zustand und einem über den 1S_0 -Zustand daran gekoppelten kurzlebigen 3P_1 -Zustand, der zur Kühlung und zum Nachweis der 'Quantum-Jumps' angeregt wird. Da beim In^+ im Gegensatz zu den leichteren Ionen Ga^+ und Al^+ die Interkombinationslinie mit einer natürlichen Linienbreite von $2\pi \times 1.3\text{MHz}$ ⁸⁴ vergleichsweise stark ist und zudem mit einer Wellenlänge von 236nm relativ langwellig angeregt werden kann, ist das Indium-Ion ein interessanter Kandidat für einen optischen Frequenzstandard. Trotz der gegenüber dem Magnesium -Ion etwa hundertmal kleineren Fluoreszenzrate könnte es in der hier beschriebenen Ionenfalle noch mit großem Signal/Rausch-Verhältnis nachgewiesen werden, da auch der Streulichtuntergrund wegen der kleineren Sättigungsintensität um den selben Faktor erniedrigt wird. Die ebenfalls kleinere Kühlleistung kann dennoch zu einer schnellen Lokalisierung in den Lamb-Dicke-Bereich führen, wenn das Ion in einer miniaturisierten Ionenfalle gespeichert wird, wo es bereits im Moment der Erzeugung eine sehr kleine

kinetische Energie besitzt.

Abgesehen vom prinzipiellen metrologischen Interesse an einer immer besseren Darstellung der grundlegenden physikalischen Einheiten liegt der Wert eines verbesserten Frequenzstandards auch in der Möglichkeit, neue Präzisionsexperimente durchzuführen. Mit einem Frequenzstandard, der an einen Hyperfeinübergang von gespeicherten Beryllium-Ionen gekoppelt war, konnte bereits ein sehr genauer Test der allgemeinen Relativitätstheorie durchgeführt werden: Die von Hughes⁸⁵ und Drever⁸⁶ gesetzte obere Schranke für die räumliche Anisotropie konnte um den Faktor 300 erniedrigt werden⁸⁷. Weiterhin werden mit einem optischen Frequenzstandard präzisere Messungen der Gravitations-Rotverschiebung möglich: Bei einer mit einem Einzelionen-Frequenzstandard prinzipiell möglichen Auflösung von $73 \cdot 10^{-18}$ werden auf der Erdoberfläche befindliche Uhren bereits bei einer Höhendifferenz von einem Zentimeter einen meßbaren Gangunterschied zeigen.

Ultrapräzise Frequenzstandards werden auch in der Radiointerferometrie mit großer Basislänge benötigt, um die Korrelationsfunktion der an weit voneinander entfernten Punkten aufgezeichneten Spannungssignale zu berechnen⁸⁸. Daraus können Position und räumliche Struktur astronomischer Objekte mit hoher Winkelauflösung ermittelt werden.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß Experimente mit einzelnen gespeicherten Ionen sowohl wegen der zu erwartenden Steigerung der spektroskopischen Auflösung als auch aus prinzipiellem Interesse an der Beobachtung eines mikroskopischen Objekts in der Zukunft von großer Bedeutung sein werden.

LITERATURVERZEICHNIS

1. A. Einstein, Z.Phys. 18, 121 (1917)
2. R. Loudon: *The quantum theory of light*, Kap.2, zweite Auflage, Oxford University Press (1983)
3. E. Jakeman, E.R. Pike, P.N. Pusey, J.M. Vaughan, J.Phys. A10, L257 (1977)
4. H.J. Carmichael, P. Drummond, P. Meystre, D.F. Walls, J.Phys. A11, L121 (1978)
5. H.J. Kimble, M. Dagenais, L. Mandel, Phys.Rev.Lett. 39, 691 (1977)
6. H.J. Kimble, M. Dagenais, L. Mandel, Phys.Rev. A18, 201 (1978)
7. M. Dagenais, L. Mandel, Phys.Rev. A18, 2217 (1978)
8. F.M. Rateike, Dissertation an der LMU, München 1978
9. J.D. Cresser, J. Häger, G. Leuchs, F.M. Rateike, H. Walther in: *Dissipative Systems in Quantum Optics*, R. Bonifacio, Springer, Berlin, Heidelberg (1982)
10. H.J. Carmichael, D.F. Walls, J.Phys. B9, 1199 (1976)
11. H.J. Kimble, L. Mandel, Phys.Rev. A13, 2123 (1976)
12. C. Cohen-Tannoudji in: *Frontiers in Laser Spectroscopy, vol.1*, R. Balian, S. Haroche, S. Liberman, North-Holland, Amsterdam (1977)
13. R. Short, L. Mandel, Phys.Rev.Lett. 51, 384 (1983)
14. W. Paul, O. Osberghaus, E. Fischer, Forschungsberichte des Wirtschafts- und Verkehrsministeriums NRW 415 (1958)
15. D.J. Wineland, W.M. Itano, Phys.Rev. A20, 1521 (1979)
16. W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, Phys.Rev. A22, 1137 (1980)
17. G. Janik, W. Nagourney, H. Dehmelt, J.Opt.Soc.Am. B2, 1251 (1985)
18. W. Nagourney, G. Janik, H. Dehmelt, Proc.Natl.Acad.Sci.USA 80, 643 (1983)
19. J.C. Bergquist, R.G. Hulet, W.M. Itano, D.J. Wineland, Phys.Rev.Lett 57, 1699 (1986)
20. R. Hanbury-Brown, R.Q. Twiss, Proc.R.Soc.London A243, 291 (1957)
21. W. Heitler: *The quantum theory of radiation*, Oxford University Press, (1954)
22. R.J. Glauber, Phys.Rev. 131 2766 (1963)
23. D.F. Walls, Nature 280, 453 (1979)
24. G. Leuchs in: *Non-Equilibrium Quantum Statistical Physics*, G. Moore, M.O. Scully, Plenum Press (1985)
25. R. Loudon², Kap.5.13
26. R.P. Feynman, Vernon, Hellwarth, J.Appl.Phys. 28, 49 (1957)
27. H.C. Torrey, Phys.Rev. 76, 1059 (1949)
28. L. Allen, J.H. Eberly: *Optical resonance and two level atom*, Kap. 3.5., J. Wiley, New York (1975)
29. H.J. Carmichael, D.F. Walls, J.Phys. B9, L43 (1976)
30. L. Mandel, Opt.Lett. 7, 205 (1979)
31. W.D. Phillips, J.V. Prodan, H.J. Metcalf, J.Opt.Soc.Am. B2, 1751 (1985)
32. J. Byrne, P.S. Farago, Proc.Phys.Soc.London 86, 801 (1965)
33. D.J. Wineland et al., J.Opt.Soc.Am. B2, 1721 (1985)

34. R.S. van Dyck et al. in: *Atomic Physics 7*, D.Kleppner, F.M. Pipkin, Plenum, New York (1981)
35. J.J. Bollinger et al., *Phys.Rev.Lett.* 54, 1000 (1984)
36. D.J. Wineland, W.M. Itano, R.S. van Dyck in: *Adv.Atom.Molec.Phys.* 19, D.R. Bates, B. Bederson, Academic Press, New York (1983)
37. G. Gabrielse, *Phys.Rev.* A27, 2277 (1983)
38. J. Meixner, F.W. Schäffke: *Mathiesche Funktionen und Sphäroid Funktionen*, Berlin (1954)
39. H.G. Dehmelt in: *Adv.Atom.Molec.Phys.* 3, D.R.Bates, I.Esterman, Academic Press, New York (1967)
40. L.D. Landau, E.M. Lifschitz: *Theoretische Physik, Bd. 1 (Mechanik)*, Kap.5, Akademie Verlag, Berlin (1966)
41. H. Schaaf, U. Schmeling, G. Werth, *Appl.Phys.* 25, 249 (1981)
42. L.S. Cutler, R.P. Giffard, M.D. McGuire, *Proc.37th Ann. Symp. Freq.Contr. Philadelphia*, 32 (1983)
43. J. Andre, *Journal de Physique* 37, 719 (1976)
44. M. Lindberg, *J.Phys.* B17, 2129 (1984)
45. M. Schwartz: *Information, Transmission, Modulation and Noise*, McGraw Hill, New York, (1954)
46. R.H. Dicke, *Phys. Rev.* 89, 472 (1953)
47. G.L. Weissler, R.W. Carlson: *Methods of Experimental Physics, vol.14*, Academic Press, New York (1979)
48. H. Kogelnik, T. Li, *Proc.IEEE* 54, 1312 (1966)
49. Coherent inc., CW dyelaser facts sheet 4 (1980)
50. *Second harmonic generation in 90° phasematched KDP isomorphs*, Quantum Technologie Inc. data sheet 704 (1979)
51. Quantum Technology data sheet 707 (1975)
52. F. Zernike, *Journ.Opt.Soc.* A54, 1215 (1964)
53. I.P. Kaminow: *An introduction to electrooptic devices*, Kap.3.4, Academic Press, New York (1974)
54. T.W. Hänsch, B. Couillaud, *Opt.Comm.* 35, 441 (1980)
55. H.J.J. Braddick: *Die Physik des experimentellen Arbeitens*, Kap.3.3, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin (1959)
56. Leybold-Heraeus: Katalogteil *Turbomolekularpumpen und Zubehör*
57. J.L. Hall, S.A. Lee, *Appl.Phys.Lett.* 29, 367 (1976)
58. S. Gerstenkorn, P. Luc: *Atlas du spectre d'absorption de la molécule d'iode*, edition du CNRS, Paris (1978)
59. S. Gerstenkorn, P. Luc, *Rev.Phys.Appl.* 14, 791 (1979)
60. D.J. Wineland, W.M. Itano, *Phys.Lett.* 82A, 75 (1981)
61. E. Rettinghaus, *Z.angew.Phys.* 22, 321 (1967)
62. D.J. Wineland, H.G. Dehmelt, *J.Appl.Phys.* 46, 920 (1975)
63. M.N. Gaboriaud, M.Desaintfusien, F.G. Major, *Int.Journ.Mass.Spect. Ion.Phys.* 41, 109 (1981)

64. F.N.H. Robinson, J.Sci.Instrum. 36, 481 (1959)
65. W. Shockley, J.Appl.Phys. 9, 635 (1938)
66. *Principles and Applications of Timing Spectroscopy*, EGG/Ortec technical note AN-42, p.7-16
67. J.C. Bergquist et al. Phys.Rev.Lett. 55, 1567 (1985)
68. W. Smith, A. Gallagher, Phys.Rev. 145, 26 (1965)
69. R. Loudon², Kap.8.2
70. M. Abramowitz, I.A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, p.390, NBS appl.math. series 55 (1964)
71. E. N. Fortson, F.G. Major, H.G. Dehmelt, Phys.Rev.Lett. 16, 221 (1966)
72. D.J. Wineland et al., Journal de Physique 42, C8-307 (1981)
73. H.G. Dehmelt, Trans.Instr.Meas. IM31, 83 (1982)
74. D.J. Wineland, Science 226, 395 (1984)
75. D.A. Jennings, F.R. Peterson, K.M. Evenson in: *Laser Spectr.*, H. Walther, K.W. Rothe, Springer, Heidelberg (1979)
76. H.G. Dehmelt, Bull.Am.Phys.Soc. 18, 1521 (1973)
77. F.T. Arecchi et al., Phys.Rev. A33, 2124 (1986)
78. W. Nagourney, J. Sandberg, H. Dehmelt, Phys.Rev.Lett. 56, 2797 (1986)
79. C. Cohen-Tannoudji, J. Dalibard, Europhys.Lett. 1, 441 (1986)
80. R.W.P. Drever et al., Appl.Phys. B31, 97 (1983)
81. R.G. de Voe, R.G. Brewer, Phys.Rev.Lett. 50, 1269 (1983)
82. U. Grzesik, Dissertation München (1985)
83. H. Hemmati, J.C. Bergquist, W.M. Itano, Opt.Lett. 8, 73 (1983)
84. T. Andersen, G. Sorensen, Phys.Rev. 5, 2447 (1972)
85. V.W. Hughes, H.G. Robinson, V. Beltran-Lopez, Phys.Rev.Lett. 4, 342 (1960)
86. R.W.P. Drever, Philos.Mag. 6, 683 (1961)
87. J.D. Prestage, J.J. Bollinger, W.M. Itano, D.J. Wineland, Phys.Rev.Lett. 54, 2387 (1985)
88. E. Preuss, Physik in unserer Zeit 11, 145 (1980)

An erster Stelle danke ich Herrn Prof. Dr. H. Walther, der die Durchführung dieser Arbeit am Max-Planck Institut für Quantenoptik ermöglichte, für seine Unterstützung.

Besonders herzlich möchte ich meinem Freund Dr. Andreas Dorsel danken, der mir jederzeit mit Rat und Tat zur Seite stand.

Die Zusammenarbeit mit Herrn Dr. H.U. Daniel hat mir sehr viel Freude gemacht; ihm danke ich für die gute Arbeitsatmosphäre während seines Aufenthalts am MPQ.

Herrn H.P. Schönauer danke ich für die sorgfältige und selbständige Mitarbeit bei der Lösung zahlreicher technischer Probleme.

Ohne die schnelle und gute Arbeit der mechanischen Werkstätten unter der Leitung der Herren K. Därndl, L. Ertl und H. Ritter wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen. Ihnen sowie allen Mitarbeitern sei herzlich gedankt; besonders den Herren R. Kopp und H. Mader möchte ich für ihre Geduld bei der oft diffizilen Anfertigung von Präzisionsteilen danken.

Herzlich danken möchte ich der Elektronikwerkstatt der Sektion Physik unter der Leitung von Dr. S. Hegewisch für den schnellen Bau des Vielkanalanalysators.

Herrn Priv. Doz. Dr. G. Leuchs danke ich für seine stete Diskussionsbereitschaft; von ihm glaube ich viel gelernt zu haben.

Herrn Dr. K.W. Rothe und Herrn Dr. M. Steiner danke ich für ihre Hilfe beim Umgang mit der EDV.

Lebenslauf

Name: Frank Diedrich
Geburtsdatum: 4. Juni 1956
Geburtsort: Hildesheim
Familienstand: ledig
Staatsbürgerschaft: deutsch
Eltern: Dr. Joachim Diedrich
Waltraud Diedrich, geb. Liebrecht

Ausbildung:

1963-1966 Grundschule in Hildesheim
1966-1975 Gymnasium in Hildesheim
1975-1977 Bundeswehr
1977 Beginn des Physikstudiums an der
Ludwig-Maximilians Universität München
1979 Vordiplom
1983 Diplom
1983 Beginn der Dissertationsarbeit am Max-Planck
Institut für Quantenoptik in Garching
1985 Wissenschaftlicher Angestellter an der Sektion
Physik der Ludwig-Maximilians Universität

